Zeitaufgelöste Experimente zur Superfluoreszenz der O_2^--Zentren in KCl-Kristallen

Reinhold Florian

Düsseldorf (1983)

RIJKS-
MUSEUM
BIBL.

Zeitaufgelöste Experimente zur Superfluoreszenz der O_2^--Zentren in KCl-Kristallen

I n a u g u r a l - D i s s e r t a t i o n

zur

Erlangung des Doktorgrades

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Universität Düsseldorf

vorgelegt

von

Reinhold Florian

aus Tullnitz

Düsseldorf (1983)

1. Berichterstatter: Prof. Dr. D. Schmid
2. Berichterstatter: Prof. Dr. A. Otto

Tag der mündlichen Prüfung: 15. 12. 1983

Inhaltsverzeichnis

		Seite
1.0	Einleitung	1
2.0	Das O_2^--Zentrum im Kaliumchloridkristall	3
2.1	Der elektronische Grundzustand	5
2.2	Der elektronisch angeregte Zustand	6
2.3	Polarisationsmessungen	7
2.4	Kristallherstellung	7
2.5	Konzentrationsbestimmung	8
3.0	Zeitaufgelöste Messungen am O_2^--Zentrum	12
3.1	Experimenteller Aufbau	12
3.1.1	Das zeitliche Auflösungsvermögen der Apparatur	14
3.2	Bestimmung der spontanen Lebensdauer	15
3.3	Bestimmung der Relaxationszeit im angeregten Zustand	17
3.4	Experimente zum Übergang von der spontanen Emission zur Superfluoreszenz	19
3.4.1	Konzentrations- und Temperaturabhängigkeit der Superfluoreszenz	22
3.4.2	Wellenlängen und Linienbreiten der SF-Pulse im Vergleich zu den Null-Phononen-linien im Spektrum der spontanen Fluoreszenz	23
3.5	Pulsdauer und Kohärenzeigenschaften	27
3.6	Andere Anregungsgeometrien	29
3.7	Abgrenzung der Superfluoreszenz zum Laser	31
4.0	Theoretische Betrachtungen	34
4.1	Übersicht	34
4.2	Dicke-Superfluoreszenz	35
4.3	Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl	40
4.3.1	Beeinflussung der Superfluoreszenz durch den Relaxationsprozeß im angeregten Zustand	41
4.3.2	Beeinflussung der Superfluoreszenz durch den Relaxationsprozeß im Grundzustand	43
5.0	Zeitaufgelöste Experimente zur Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl	47
5.1	Experimente zur Statistik der Superfluoreszenz	47
5.2	Experimente zur Polarisation der Superfluoreszenz	55
5.3	Experimente zur getriggerten Superfluoreszenz	59
5.4	Experimente zur Zwei-Farben-Superfluoreszenz	64
6.0	Zusammenfassung	70
7.0	Literaturverzeichnis	73

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41543915_0048

1.0 Einleitung

Das O_2^--Molekülion in Alkalihalogenidkristallen wird bereits seit etwa 50 Jahren in der Festkörperforschung untersucht. Mit Hilfe der Methode der Elektronenspinresonanz und optischer Spektroskopie ist der Kenntnisstand über dieses Zentrum sehr fortgeschritten (siehe Kap. 2).

Die gelbe Lumineszenz der O_2^--Zentren in Alkalihalogeniden liegt im Wellenlängenbereich von etwa 400 nm bis etwa 800 nm und läßt sich selektiv bei etwa 250 nm anregen. Bei der Temperatur des flüssigen Heliums besteht das Spektrum der spontanen Emission hauptsächlich aus schmalen Linien, die auf eine sehr geringe Wechselwirkung der Zentren mit dem Wirtsgitter schließen lassen.

Diese offenbar sehr geringe Kopplung an das Gitter, verbunden mit der sehr großen Stokes-Verschiebung und der hohen Quantenausbeute der Fluoreszenz, eröffnen interessante Möglichkeiten, die im Absorptions-Emissions-Zyklus auftretenden Relaxationsprozesse zu untersuchen. Über derartige Relaxationsprozesse, die für das Verständnis elektronischer Übergänge im Festkörper von großem Interesse sind, liegen experimentell noch fast keine Resultate vor. Es wird allgemein angenommen, daß sie im Picosekunden- oder Subpicosekundenbereich ablaufen. Das O_2^--Zentrum wurde in der vorliegenden Arbeit zur Untersuchung dieser Prozesse ausgewählt, da die Hoffnung bestand, daß wegen der schwachen Gitterkopplung die Relaxationsprozesse in Zeiträumen ablaufen, die mit der mit den zur Verfügung stehenden Geräten erzielbaren Zeitauflösung (ca. 30 ps) untersucht werden können.

Im Verlauf der Untersuchung wurde bei hoher Anregungsdichte eine zusätzliche sehr intensive kohärente Emission beobachtet, die als Superfluoreszenz identifiziert werden konnte. Diese Strahlungsart wurde bereits 1954 von Dicke vorhergesagt und in der Folgezeit intensiv theoretisch untersucht. Im Gegensatz dazu liegen nur sehr wenige experimentelle Beob-

achtungen dazu vor, insbesondere keine zeitaufgelösten Experimente im sichtbaren Spektralbereich und im Festkörper. Deshalb konzentrierten sich die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente auf die Untersuchung des Superfluoreszenzprozesses. Hierbei eröffneten sich aber auch neue Wege, über das Aufkommen der Superfluoreszenzpulse einen Zugang zu den Relaxationsprozessen im angeregten Zustand und im Grundzustand zu finden (siehe Kap. 4).

Somit hat diese Arbeit das Ziel einer systematischen, zeitaufgelösten, experimentellen Untersuchung der Superfluoreszenz von O_2^--Zentren in Kaliumchloridkristallen. Es hat sich bei dieser Arbeit als sinnvoll erwiesen, die weiterführenden experimentellen Untersuchungen zur Statistik (siehe Kap. 5.1), zur Polarisation (siehe Kap. 5.2) und zur Triggerung der Superfluoreszenz (siehe Kap. 5.3) und schließlich zur "Zwei-Farben-Superfluoreszenz" (siehe Kap. 5.4) in den dazugehörigen Kapiteln direkt mit einer Diskussion abzuschließen. Deshalb wurde in dieser Arbeit auf die sonst übliche geschlossene Gesamtdiskussion aller Experimente verzichtet.

Die Arbeit gliedert sich dementsprechend folgendermaßen: Im Teil 2 werden die bisher bekannten Eigenschaften des O_2^--Zentrums, das Kristallherstellungsverfahren und die Konzentrationsbestimmung vorgestellt. Der Grundaufbau der verwendeten Apparatur und die in dieser Arbeit verwendeten experimentellen Untersuchungsmethoden werden in Teil 3 vorgestellt. Unter anderem werden die Experimente referiert, die zur Identifizierung der kohärenten Strahlung als Superfluoreszenz führten. Teil 4 gibt einen kurzen Abriß über die theoretisch diskutierten Konzepte, ohne allerdings auch nur annähernd Anspruch auf Vollständigkeit zu erheben. Es muß hier auf die außerordentlich umfangreiche Originalliteratur und Übersichtsartikel verwiesen werden. Im 5. Teil werden dann die weiterführenden Experimente beschrieben, von denen insbesondere die "Zwei-Farben-Superfluoreszenz" ein bisher noch nicht beobachtetes Phänomen ist, dessen Eigenschaften auch vom theoretischen Standpunkt aus großes Interesse besitzen.

2.0 Das O_2^--Zentrum im Kaliumchloridkristall

Alkalihalogenide sind vom ultravioletten bis hin in den infraroten Spektralbereich durchsichtig. Die ersten optischen Untersuchungen an diesen Kristallen bis ins Vakuumultraviolett gehen auf Pohl und seine Mitarbeiter zurück /1/. Von hier stammen auch die Impulse, fremde Anionen zum Grundmaterial hinzuzufügen, um die physikalischen Eigenschaften der Kristalle zu verändern. So war schon früh bekannt, daß sich Sauerstoff in Alkalihalogenide einbauen läßt /2/.

Auf die gelbe Fluoreszenz der O_2^--Zentren hat von Lüpke /6/ schon 1934 hingewiesen. Die ersten Emissionsspektren gehen auf Honrath /7/ und die ersten Absorptionsspektren auf Akpinar /5/ zurück. Genauere Kenntnisse /3/ über einen Teil der Zentren in Kristallen erhält man mit Hilfe der Methode der Elektronen-Spin-Resonanz (ESR). Das erste ESR-Spektrum vom O_2^--Molekülion in Alkalihalogenidkristallen ist von Känzig und Cohen /4/ gemessen worden. Aufgrund der Analyse des g-Tensors konnte die Einbaulage des O_2^--Moleküls im elektronischen Grundzustand bestimmt werden. Es befindet sich auf einem Halogengitterplatz mit der Molekülachse in ⟨110⟩-Richtung (Orthorhombische Punktsymmetrie).

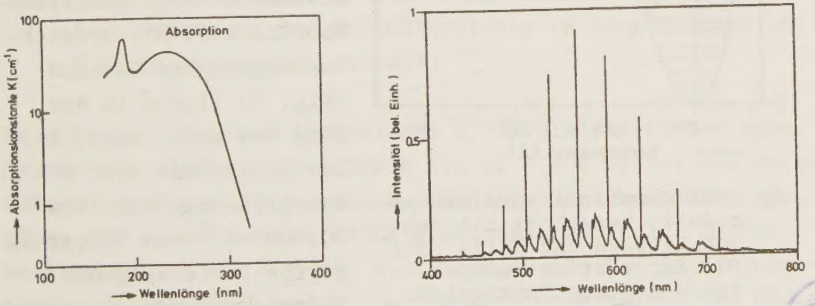

Fig. 1: (links): Absorptionsspektrum KCl:O_2^-/12/ bei 77 K
(rechts): Fluoreszenzspektrum KCl:O_2^- bei 4,2 K
(Übersichtsspektrum mit stark geöffneten Spalten)

Ein O_2^--Absorptionsspektrum und Emissionsspektrum im KCl zeigt Fig. 1. Das Absorptionsspektrum von Fischer, Gründig

und Hilsch /12/ hat eine ausgeprägte breite Bande bei 250 nm, die bis Heliumtemperatur nur geringfügig temperaturabhängig ist. Im Gegensatz dazu ist die schmale Bande bei etwa 183 nm (meistens durch die OH^-Bande (204 nm) überdeckt stark temperaturabhängig. Es wird vermutet, daß es sich dabei um einen Elektronenübergang vom O_2^- zu benachbarten K^+-Ionen handelt. Durch Einstrahlen in den Schwerpunkt der breiten Bande mit einer Hg-Lampe (254 nm) erhält man das in Fig. 1 rechts wiedergegebene Fluoreszenzspektrum bei 4,2 K.

Der Absorptions- und Emissionsprozeß läßt sich anhand des Konfigurationskoordinatenmodells beschreiben. Nach der Anregung des O_2^--Zentrums vom elektronischen Grundzustand in den angeregten Zustand ändern sich die Ladungsverhältnisse und damit auch die Bindungskräfte. Das Molekül reagiert darauf während des nachfolgenden Relaxationsprozesses durch Änderung des relativen Kernabstandes (Konfigurationskoordinate). Die erreichten angeregten Niveaus (Fig. 2) liegen in der Nähe des Kontinuums. Bei der Relaxation wird ein Energiebetrag von etwa 10.000 cm^{-1} ans Gitter abgegeben. Die folgende Emission in die einzelnen vibronischen Niveaus des Grundzustands ist bei Zimmertemperatur wenig strukturiert. Die starke Kopplung ans Gitter nimmt mit fallender Temperatur ab. Unterhalb von etwa 80 K treten sehr scharfe Null-Phononenlinien auf, die bei Heliumtemperatur das Spektrum dominieren. Neben den Null-Phononenlinien befinden sich die Phononenseitenbanden.

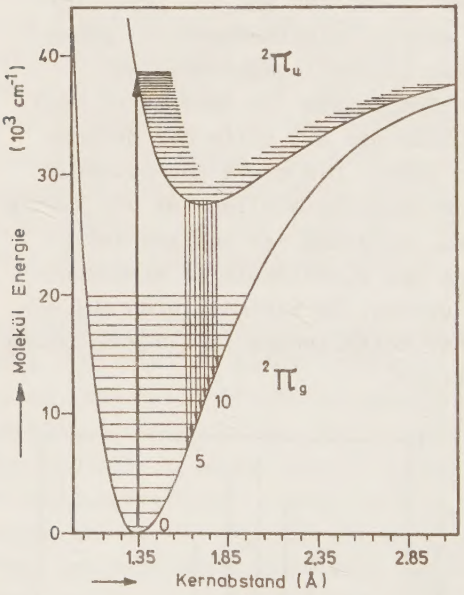

Fig. 2: Konfigurationskoordinatenmodell, berechnet mit den von Ikezawa und Rolfe /54/ für KBr bestimmten spektroskopischen Konstanten.

2.1 Der elektronische Grundzustand

Die für die Elektronenkonfiguration verantwortlichen Molekülorbitale setzen sich aus den p-Orbitalen zu einem $^2\pi_g$-Zustand zusammen (Fig. 3), /4, 14, 15, 55, 63/. Winkelabhängige ESR-Messungen an den paraelastischen O_2^--Zentren /14, 15/, auch unter einachsialem Druck, zeigten, daß der $^2\pi_g^x$-Zustand etwa um 200 cm^{-1} energetisch günstiger liegt als der $^2\pi_g^y$-Zustand (Fig. 3). Diese Aufspaltung ist auch im Heliumspektrum (Fig. 2) durch eine zusätzliche Bande zwischen zwei Null-Phononenlinien zu erkennen.

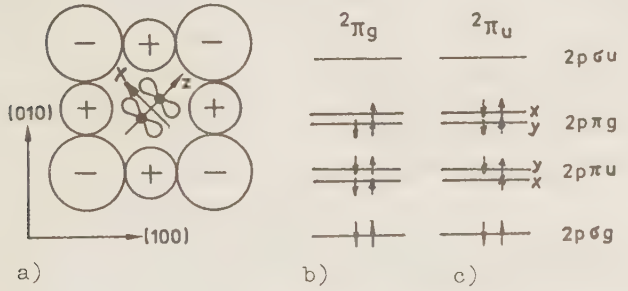

Fig. 3 a: O_2^--Molekülion im KCl (Grundzustand $^2\pi_g^x$)
3 b: Besetzung der Molekülorbitale im Grundzustand und
3 c: im angeregten Zustand.

Es gibt im KCl sechs äquivalente ⟨110⟩ Gleichgewichtslagen. Selbst bei tiefen Temperaturen bis zu 1,5 K friert das Molekülion nicht ein /14/, sondern kann die Gleichgewichtslage längs der verschiedenen ⟨110⟩ Richtungen wechseln. Im Temperaturbereich von 1,9 bis 4,2 K liegen die Reorientierungszeiten im Sekundenbereich. Das Temperaturverhalten der Umorientierungszeit /14/ deutet auf einen Tunnelprozeß hin. Bei Temperaturen über 4,2 K setzt eine gehinderte Rotation der Zentren ein (Arrhenius-Verhalten). Oberhalb 20 K können die O_2^--Zentren fast frei rotieren, und das ESR-Signal nimmt drastisch ab, bis es bei etwa 32 K verschwindet.

Aus Emissionsmessungen lassen sich Aussagen über vibronische Anregungen des Grundzustands erhalten, da Übergänge ohne Gitterphononen auftreten. Die Vibrationsbanden lassen sich durch die empirische Beziehung /9, 10, 79/

$$\nu = \nu_{00} - \omega_0'' v'' + \omega_0'' x_0'' (v'')^2 \qquad (1)$$

beschreiben. ω_0'' und $\omega_0'' x_0''$ sind die spektroskopischen Konstanten und v'' die Quantenzahlen im Grundzustand. Anhand der spektroskopischen Konstanten kann man das Morsepotential des Grundzustandes bestimmen /78, 80/. Mit Hilfe der Null-Phononenlinien der isotopen Moleküle /54/ konnten die spektroskopischen Konstanten für den elektronischen Grundzustand bestimmt werden. Gemäß Ikezawa und Rolfe /54/ gilt für das KCl als Wirtsgitter bei 1,9 K:

$$\nu_{00} = 27549 \pm 2 \ cm^{-1}$$
$$\omega_0'' = 1153 \pm 0{,}4 \ cm^{-1}$$
$$\omega_0'' x_0'' = 8{,}52 \pm 0{,}02 \ cm^{-1}$$

2.2 Der elektronisch angeregte Zustand

Das Morsepotential für den angeregten Zustand läßt sich erst dann bestimmen, wenn auch im Absorptionsspektrum die Schwingungsstruktur aufgelöst werden kann. Dies gelang zuerst Ikezawa und Rolfe /54/ für das O_2^- im KBr mit Hilfe der Technik der Fluoreszenz-Anregungs-Spektroskopie. Mit diesen Konstanten ist das Morse-Potential (Fig. 2) berechnet worden. Es wird für die weitere Diskussion auf das O_2^--Zentrum im KCl sinngemäß übertragen. Im KCl sind die Null-Phononenlinien im Anregungsspektrum bisher noch nicht aufgelöst worden. Die Unterschiede der spektroskopischen Konstanten für Emissionsspektren zwischen KBr und KCl sind gering /54/.

Die Molekülachse des Zentrums im relaxierten angeregten Zustand liegt vermutlich wie im Grundzustand in ⟨110⟩-Richtung. Diese Annahme wird bestätigt durch Messungen des induzierten linearen

Dichroismus unter Druck /54/, durch Messungen der Zeemanaufspaltung der Null-Phononenlinien /76, 63/ und durch Messungen der spontanen Emission bei hohen Drücken. Die Bestimmung der Richtung des Übergangdipolmoments in Richtung der Molekülachse /15,54/ wird durch die Umorientierung der Zentren erschwert.

2.3 Polarisationsmessungen

Die Fluoreszenz der O_2^--Zentren ist auch bei polarisierter Anregung (254 nm) nicht meßbar polarisiert /9, 15/. Daraus resultiert, daß sich die Zentren auch im angeregten Zustand umorientieren können. Strahlt man in dem langwelligen Bereich der Absorptionsbande ein (337 nm; N_2-Laser), dann beobachtet man einen Polarisationsgrad bei He-Temperatur je nach Orientierung des Kristalls zwischen 30 und 50 % /63/. Diese Reorientierung findet in zwei physikalisch verschiedenen Prozessen statt /63/:

a) Reorientierung während der Relaxation
   "Phononeninduzierte Reorientierung"
b) Reorientierung im relaxierten Zustand
   "Thermisch aktivierte Reorientierung"

Die Potentiale für die Reorientierung lassen sich nur für den Fall b) aus der Temperaturabhängigkeit des Polarisationsgrades bestimmen /71, 63/. Bei Temperaturen von 4,2 bis etwa 8 K konnte eine Aktivierungsenergie für phononenunterstütztes Tunneln von 10 cm^{-1} und bei Temperaturen von 8 bis 20 K von 60 cm^{-1} für thermisch aktivierte Reorientierung ermittelt werden. Für Temperaturen größer als 25 K ist die Fluoreszenz unpolarisiert.

2.4 Kristallherstellung

Die meisten Kristalle sind aus der Schmelze an Luft mit Zusatz von Kaliumhyperoxid KO_2 nach dem Czochralski-Verfahren hergestellt worden. Es wurden die Ausgangsmaterialien KCl (zur Analyse) von der Firma J.T. Baker Chemicals B.V. und

KO_2 (Reinheitsgrad 96,5 %) von der Firma Ventron GmbH verwendet.

Auch ohne sauerstoffhaltige Zusätze zeigen an Luft gezogene Alkalihalogenide (Ausnahme bilden Fluoride und Li-Halogenide) bei Anregung mit UV-Licht die gelbe Fluoreszenz des O_2^--Molekülions /12, 15/. Beim KCl z.B. reagiert der Luftsauerstoff mit der Schmelze gemäß folgender Reaktion /12/:

$$KCl + O_2 \rightleftharpoons KO_2 + \frac{1}{2} Cl_2 \qquad (2)$$

Die durch diese Reaktion erreichbaren Zentrenkonzentrationen liegen bei 2×10^{16} cm^{-3} /12/.

Eine Steigerung der Zentrenkonzentration wird durch Zusatz von KO_2 zur Schmelze erreicht. Obwohl sich in der Schmelze durch Aufnahme und Abgabe von Sauerstoff alle Oxidationsstufen des Kaliums bilden können (K_2O, K_2O_2, K_2O_3 und K_2O_4), baut sich nach Fischer, Gründig und Hilsch /12/ nur das KO_2 ein. Das KO_2 ist gegenüber Feuchtigkeit hochempfindlich und bildet schon mit Spuren von Wasserdampf KOH /12/. KCl hydrolysiert auch bei hohen Temperaturen. Danach ist zu erwarten, daß die unter Normalatmosphäre gezogenen Kristalle mit und ohne KO_2-Zusätze eine nicht zu vernachlässigende OH^--Zentrenkonzentration enthalten.

2.5 Konzentrationsbestimmung

Die Konzentrationsbestimmung von Zentren im KCl über die Lage und Breite der Absorptionsbande ist zuerst für das F-Zentrum von Smakula /81/ hergeleitet worden. Nach der Beziehung

$$N(F) = C(F) \cdot K \cdot H \qquad (3)$$

lassen sich bei bekannter Absorptionskonstante K im Maximum der F-Bande, Halbwertsbreite H in eV der Absorptionsbande und bekannter Konstante C(F) /82/ die F-Zentrenkonzentration N(F)

in Alkalihalogenide bestimmen. Für den KCl-Kristall ist $C(F) = 1{,}04 \times 10^{16}\ eV^{-1}\ cm^{-2}$. (K ist definiert als $K = (1/d)\ \ln\ (I/I_0)$, wo I_0 die einfallende Intensität, I die von der Probe durchgelassene Intensität und d die Dicke der Probe sind).

Fischer, Gründig und Hilsch /12/ haben die Konstante $C(O_2^-)$ für den KCl experimentell ermittelt. Sie haben dabei folgende Reaktion ausgenützt:

$$O_2^- + 3\,[e^-] = 2O^{--} + 2\,\square \qquad (4)$$

$[e^-]$ = F-Zentrum, $\square$ = Halogenionlücke

Aus einem O_2^--Zentrum entstehen zwei O^{--}-Zentren durch "Spülen" des Kristalls mit F-Zentren. Durch Beobachtung des Abbaus der O_2^--Bande (5,09 eV) und Aufbaus der O^{--}-Bande (4,34 eV) konnte $C(O_2^-)$ bei bereits bekannter $C(O^{--})$ bestimmt werden. $C(O^{--})$ konnte durch die photometrische Umwandlung nach der Reaktionsgleichung

$$O^{--} + \square \xrightarrow{h\nu} O^- + [e^-] \qquad (5)$$

über die bekannte Konstante C(F) des F-Zentrums ermittelt werden. Es ergab sich ein $C(O_2^-)$ von $5{,}8 \times 10^{16}\ eV^{-1}\ cm^{-2}$ /12/ für KCl. Die Halbwertsbreite ist nur schwach T-abhängig und hat den Wert $H \sim 1{,}2$ eV.

Die Absorptionsspektren wurden in der vorliegenden Arbeit mit einem Zeiss-Spektralphotometer PMQ II gemessen. Die dem O_2^- Absorptionsspektrum teilweise unterlagerte störende OH^--Bande bei 204 nm mit der Halbwertsbreite von 0,78 eV /11/ wurde abgezogen. Fig. 4 zeigt die O_2^--Konzentration in Abhängigkeit vom KO_2 Zusatz zur Schmelze.

Auch bei sorgfältiger Einwaage des KO_2-Zusatzes zeigen verschiedene Kristalle gleicher Einwaage unterschiedliche O_2^--Konzentrationen. Die Fehlerbalken beziehen sich auf Konzentrationsbestimmungen an gleichen Kristallen, jedoch Messungen

an benachbarten Bereichen. Selbst undotierte Kristalle zeigen Konzentrationsunterschiede zwischen $1{,}5 \times 10^{16}$ und $2{,}5 \times 10^{16}$ cm^{-3}. Ein Grund für die Schwankungen kann auf die unterschiedliche Standzeit der Mischschmelze bis zum Einsetzen

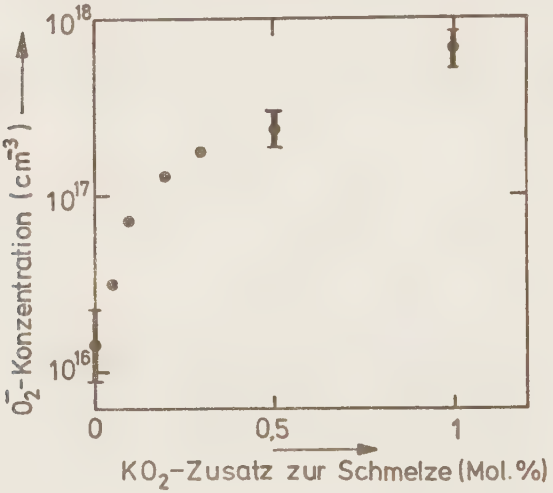

Fig. 4: O_2^--Konzentration in KCl in Abhängigkeit vom Zusatz KO_2(Mol %) zur Schmelze

des Kristallwachstums (Tellerbildung, Einschnüren und Ziehgeschwindigkeit) zurückgeführt werden. Je nach Feuchtigkeitsgehalt der Luft bildet sich mehr oder weniger KOH in der Schmelze. Das Verhältnis $N(OH^-)$ zu $N(O_2^-)$ liegt bei undotierten Kristallen zwischen 7 und 8 bei 1 Mol % KO_2 dotierten zwischen 4 und 5. Eine weitere Erklärung für die unterschiedlichen Konzentrationen liegt darin, daß sich die Zentren nicht homogen einbauen. Am Kristallanfang ist die O_2^--Konzentration geringer als am Kristallende, wo manchmal eine Trübung zu erkennen ist.

Im Prinzip wäre die Konzentrationsbestimmung auf chemischem Wege durch Titration möglich. Das O_2^- löst sich in Wasser gemäß folgender Gleichung auf /26/:

$$2O_2^- + 2H_2O \rightleftharpoons 2OH^- + H_2O_2 + O_2\uparrow \qquad (6)$$

Durch Neutralisationstitration könnte man über die OH^--Konzentration die O_2^--Konzentration bestimmen. Aus den optischen Messungen jedoch hat sich herausgestellt, daß das Verhältnis $N(OH^-)/N(O_2^-)$ bei 5 bis 8 liegt. Diese Methode kann also nur bei OH^- freien Kristallen angewandt werden /12, 11/.

3.0 Zeitaufgelöste Messungen am O_2^--Zentrum

Mit Hilfe von zeitaufgelösten Messungen wurde bisher nur die Lebensdauer des angeregten Zustandes vom O_2^--Zentrum in KCl untersucht. Hierbei wurde die Abklingdauer der spontanen Fluoreszenz bestimmt /63/. Die in der vorliegenden Arbeit vorgestellten zeitaufgelösten Experimente an diesen Zentren konzentrieren sich auf die Dynamik der Fluoreszenz bei hohen Anregungsdichten. Die daraus resultierenden Erkenntnisse über die Relaxationsprozesse im angeregten- und Grundzustand werden durch bisher fehlende temperaturabhängige Messungen der spontanen Lebensdauer und durch eine experimentelle Abgrenzung der Relaxationszeit im angeregten Zustand ergänzt.

3.1 Experimenteller Aufbau

Da der experimentelle Aufbau für die zahlreichen verschiedenen Experimente häufig modifiziert wurde, ist es sinnvoll, nur den Grundaufbau der Apparatur zu beschreiben. Die genaue Zuordnung der Geräte ändert sich bei jedem Experiment. Der Grundaufbau der Apparatur setzt sich aus drei wesentlichen Bestandteilen zusammen:

a) Lichtquellen zur Anregung,
b) Nachweissystem,
c) Vakuumtechnik und Heliumtechnik
   für die verwendeten Kryostaten.

Für statische Messungen standen eine Deuteriumlampe (Original Hanau) Typ D 200 F, eine Hg-Niederdrucklampe (Oriel Corporation) Typ 6035 mit Netzgerät (Oriel) Typ 6064, eine Xe-Niederdrucklampe (Oriel), Typ 6033 mit dazugehörigem Netzgerät (Oriel) Typ 6044, eine Hg-Höchstdrucklampe (Osram) Typ HBO 200 W/1 und eine Xe-Höchstdrucklampe (Osram) Typ XBO 150 W/1 zur Verfügung. Ein modengekoppelter Nd:YAG-Laser (JK Lasers Limited) System 2000 diente als Anregungsquelle bei zeitaufgelösten Messungen. Die Frequenz der Grundwelle von 1064 nm konnte verdoppelt (532 nm), verdreifacht (354,6 nm) und vervierfacht (266 nm) werden. Im Normalbetrieb liefert der Laser einen Pulszug be-

stehend aus etwa 10 Pulsen im Abstand von 7,5 ns (Resonatorumlaufzeit) und 30 ps Pulsbreite. Durch eine Zusatzeinrichtung (Pockelzelle, die über eine vom Pulszug selbst gezündete Funkenstrecke getriggert wird) kann aus dem Pulszug nur der intensivste Puls durchgelassen werden (Einzelpulsbetrieb). Zu dem Oszillator kann noch ein Verstärker zugeschaltet werden.

Um statische Spektren aufzunehmen, standen ein 0,6 m Monochromator (Jobin Yvon), Modell HRP und ein 1,5 m Monochromator (Jobin Yvon), Modell HR 1500 P mit einem Photomultiplier (Hamamatsu), Typ R 955, eine Hochspannungsversorgung bis 2,5 kV (Brandenburg), Modell 476 R und ein (x, t)-Schreiber (Philips), Typ PM 8202 zur Verfügung.

Für zeitaufgelöste Messungen wurde als zentraler Baustein ein 1 GHz Oszillograph (Tektronix), Typ 7104 eingesetzt. Das Oszillographenbild konnte mit einer digitalisierenden Kamera (Thomson-CSF), Typ TSN 1150-01 und Type TSN 1150-10 über einen Mikroprozessor (Kontron), Modell Psi 80 ausgelesen und abgespeichert werden. Als schnelle Detektoren dienten ein Micro-Channel-Plate Multiplier (Hamamatsu), Typ R 1294 U 1 und eine Photodiode (Valvo), Typ UVHC 20. Für diese Detektoren stand noch eine weitere Hochspannungsversorgung bis 5 kV (Brandenburg), alpha series II zur Verfügung.

Die temperaturabhängigen Messungen sind mit einem Verdampferkryostaten (Leybold-Haraus), Typ VSK 41300 gemacht worden. Die Temperaturregelung erfolgte mit einem elektronischen Regelgerät (Leybold-Heraus), Typ ER 3. Zur Temperaturbestimmung werden ein 100 Ohm Thermistor und ein Platinwiderstand, Pt 100 eingesetzt. Für Messungen bei festen Temperaturen (He, N_2) wurde ein Kontaktkryostat nach einem Vorbild aus dem Phys. Inst. der Universität Stgt. von der Firma Kryo-Vac nachgebaut. Eine Öldiffusionspumpe (Leybold-Heraus), Typ 22591 mit einer einstufigen Drehschieberpumpe (Leybold-Heraus), Typ D 2 A erzielte ein Vakuum zwischen 10^{-5} und 10^{-6} bar.

3.1.1 Das zeitliche Auflösungsvermögen der Apparatur

Als zentraler Baustein bei zeitauflösenden Messungen dient ein 1 GHz Oszillograph. Je nach Verwendungszweck wurde eine Photodiode, ein Micro-Channel-Plate Photomultiplier (MCP) oder ein Photomultiplier R 955 verwendet.

Das zeitliche Auflösungsvermögen der Kombination Photodiode und Oszillograph mit digitalisierender Kamera (am häufigsten verwendet) kann mit folgendem experimentellen Aufbau bestimmt werden.

Der grüne (532 nm) Laserpuls wird durch ein aus zwei Interferenzfiltern aufgebautes Fabry-Perot-Interferometer geschickt. Durch Verändern der Länge L kann der Pulsabstand der Mehrfachreflexionen variiert werden. Aus einem 30 ps Laserpuls entsteht als Antwortfunktion des gesamten Nachweissystems ein etwa 500 ps breiter Puls. Je nach eingestellter Länge L treten die Mehrfachreflexionen in Abständen von 1,81 ns, 0,45 ns und 0,31 ns auf. Das Auflösungsvermögen wird durch den verwendeten Oszillographen begrenzt. Die Photodiode hat gemäß Firmenspezifikation (Valvo) eine Anstiegszeit von $t_r < 200$ ps. Der Oszillograph hat eine Anstiegszeit von $t_r = 350$ ps /83/.

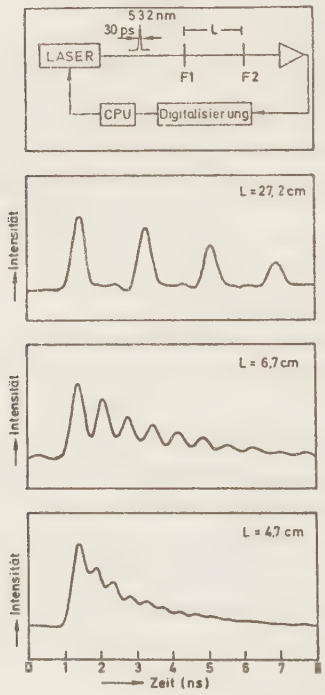

Fig. 5: Mehrfachreflexionen des 30 ps Laserpulses in einem aus zwei Interferenzfiltern aufgebauten Fabry-Perot-Interferometer

Bei Auswertung der Mehrfachpulse konnte weiterhin festgestellt werden, daß die Digitalisierungsfehler der Kamera bei $\pm$ 1 Punkten liegen. Bei dem gegebenen Diodenraster

der Kamera von 256 x 256 Punkten ergibt das bei der eingestellten Zeitbasis am Oszillographen von 1 ns/Teilstrich einen Fehler von ± 40 ps. Zusammen mit einem internen Triggerfehler (internal trigger jitter /84/) von 30 ps ergibt das zusammen einen Fehler von ± 70 ps.

Die Einhüllende der Mehrfachpulse müßte theoretisch eine abfallende Exponentialfunktion ergeben. Die Abweichung vom Idealverhalten ist auf das Sättigungsverhalten der Diode bei zu hohen Anregungsdichten des Lasers zurückzuführen.

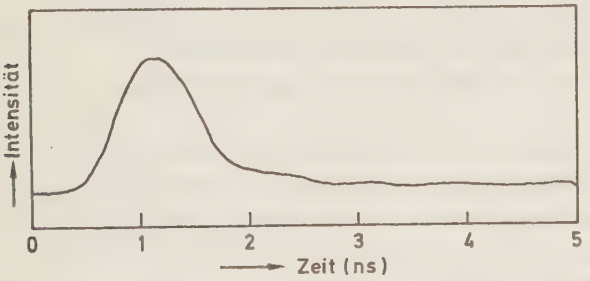

Fig. 6: Systemantwort auf einen 30 ps Laserpuls (532 nm) der Kombination Oszillograph, Monochromator mit MCP-Photomultiplier

Die Zeitauflösung gleicher Größenordnung wurde durch die Kombination Monochromator, Micro-Channel-Plate Photomultiplier und Digitalisierung (Anstiegszeit MCP t_r = 350 ps) gemäß Fig. 6 erreicht.

3.2 Bestimmung der spontanen Lebensdauer

Die Meßmethode läßt sich anhand des Konfigurationskoordinatenmodells (Fig.2) einfach erklären. Durch den 30 ps Anregungsimpuls der vierten Harmonischen des Nd:YAG Lasers wird das System in etwa das 29ste vibronische Niveau des angeregten Zustands versetzt. Die überschüssige Schwingungsenergie wird vom Molekül im angeregten Zustand durch Relaxationspro-

zesse an das Gitter abgegeben.

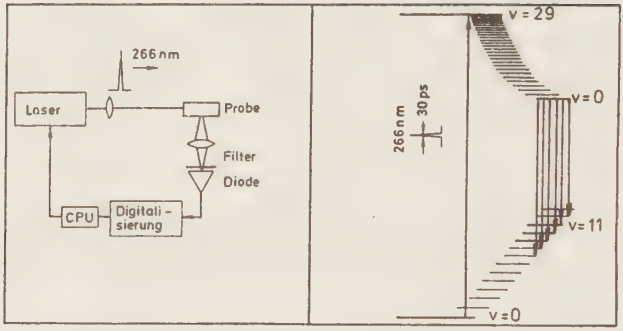

Fig. 7: (links) Experimenteller Aufbau zur Bestimmung der Lebensdauer der spontanen Emission
(rechts) Energieniveaus des O_2^--Zentrums

Die spontane Emission geht vom relaxierten angeregten Zustand aus. Das zeitliche Verhalten dieser Emission ist wellenlängenunabhängig. Der experimentelle Aufbau ist aus Fig. 7 ersichtlich. Durch einen Kantenfilter WG 420 (Schott) wird das Anregungslicht des Lasers ausgeblendet. Die gesamte spontane Emission wird über die Photodiode nachgewiesen.

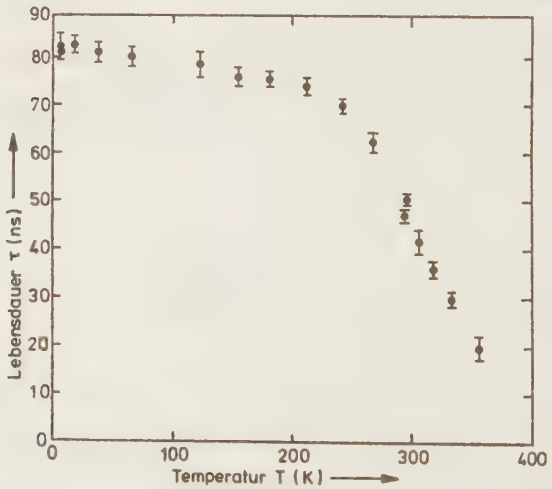

Fig. 8: Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer des O_2^--Zentrums im KCl

Die spontane Emission klingt gemäß einer Exponentialfunktion

$$Y(t) = Y(0) \exp(-t/\tau_0) \qquad (7)$$

ab. Die Konstanten Y(0) und τ_0 sind numerisch durch Anpassung der Exponentialfunktion an die Meßkurven bestimmt worden. Die Probentemperatur ist bis Stickstofftemperatur mit einem Thermistor und bei Temperaturen darüber mit einem Platinwiderstand bestimmt worden. Das Ergebnis der Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer τ_0 des O_2^--Zentrums im KCl zeigt Fig. 8.

Im Temperaturbereich von 4,2 bis 30 K bleibt die Lebensdauer mit (81,5 $\pm$ 2,0) ns konstant. Zwischen etwa 30 K und 200 K ändert sich τ_0 nur schwach. Danach nimmt die spontane Lebensdauer rapide ab.

3.3 Versuch der Bestimmung der Relaxationszeit im angeregten Zustand

Die Relaxationszeit kann im Prinzip über das zeitliche Verhalten des Anklingens der spontanen Emission gemessen werden. Der experimentelle Aufbau zur Lebensdauermessung (Fig. 7) muß dafür geringfügig verändert werden. Um eine eventuell vorhandene Zeitverschiebung zwischen Anregung und dem Einsetzen der spontanen Emission registrieren zu können, wird eine zusätzliche Zeitreferenz benötigt. Es bietet sich dafür die zweite Harmonische des YAG Lasers an. Bei 532 nm sind die Kristalle transparent.

Der UV-Anregungspuls wird durch eine zusätzliche Verzögerungsstrecke mit wellenlängenselektiven Spiegeln gegenüber dem grünen Referenzpuls verzögert. Das Streulicht dieses Referenzpulses von der Probe auf die Photodiode führt zu einem Zeitreferenzsignal. Die Zeitdifferenz zwischen diesem Referenzzeitpunkt und dem Anregungszeitpunkt wird durch die Laufzeit des UV-Pulses in der Verzögerungsstrecke gegeben und ist somit exakt bekannt.

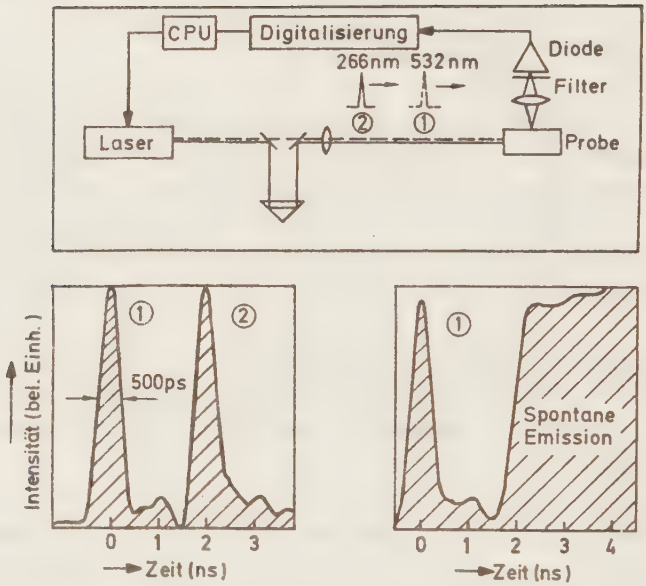

Fig. 9: (oben) Experimenteller Aufbau zur Messung der Relaxationszeit
Puls 1: Referenzpuls 532 nm
Puls 2: UV-Anregungspuls 266 nm, durch die Laufzeit innerhalb der Verzögerungsstrecke um etwa 2 ns gegenüber Puls 1 verzögert.
(unten links) Meßergebnis bei Kristallstellung in Reflexion (Zeiteichung)
(unten rechts) Meßergebnis bei oben eingezeichneter Kristallstellung. Anstelle von Puls 2 (der UV-Puls wird durch einen Filter stark absorbiert) ist das Anklingen der spontanen Emission zu sehen.

Die Systemantwort auf die zwei Pulse erhält man durch Drehen des Kristalls in Reflexionsstellung (Pulse 1 und 2). Anschließend wird der Kristall in die eingezeichnete Position gebracht. Der UV-Anregungspuls (Puls 2) wird durch ein geeignetes Filter WG 360 (Schott) absorbiert. An seine Stelle wird das durch ihn initiierte spontane Leuchten der Zentren nachgewiesen. Die spontane Fluoreszenz klingt in diesem Maßstab um mehr als zwei Größenordnungen langsamer ab.

Zur Verbesserung der Zeitauflösung kann numerisch die zeitliche Antwortfunktion aus dem gemessenen Signal herausgefaltet werden. Diese Antwortfunktion kann wiederum aus der Antwort des Gesamtsystems auf einem 30 ps-Laserpuls ermittelt werden. Mit diesem Verfahren hätte eine Anstiegszeit > 150 ps erkannt werden müssen. Die Signale liefern aber keinen Hinweis auf einen solchen Anstieg, so daß geschlossen werden kann, daß die Relaxation in weniger als 150 ps stattfindet.

3.4 Experimente zum Übergang von der spontanen Emission zur Superfluoreszenz

Nach der Anregung der O_2^--Zentren mit einem 30 ps breiten Laserpuls bei 266 nm (vierte Harmonische des Nd:YAG Lasers) mit nicht zu hoher Anregungsintensität (< 1 GW/cm^2) beobachtet man die bekannte gelbe Lumineszenz der spontanen Emission.

Wird die Anregungsenergie bei tiefen Temperaturen $T < 28$ K erhöht, dann erscheint ab einer Schwellintensität (> 10 GW/cm^2) zum gewohnten Bild des spontanen Leuchtens eine monochromatisch intensive gebündelte Strahlung, die zunächst rot (λ = 629 nm), dann rot und gelb (λ = 593 nm) und bei weiterer Steigerung der Anregungsenergie innerhalb der Meßgenauigkeit ausschließlich gelb leuchtet. Bei konstanten Anregungsenergien oberhalb der Schwellenergie können die einzelnen Farben durch Änderung der Fokussierungsbedingungen, d.h. Änderung der Anregungsdichte variiert werden. Daraus folgt, daß die Anregungskonzentration beim Zustandekommen der zusätzlichen Strahlung eine Rolle spielt.

Innerhalb des Temperaturbereichs, in dem die zusätzliche Strahlung auftritt, ändert sich die spontane Lebensdauer nicht signifikant, s. Fig. 8. Auch die relativen Intensitäten der Null-Phononenlinien im statischen Spektrum zeigen keine meßbare Änderung.

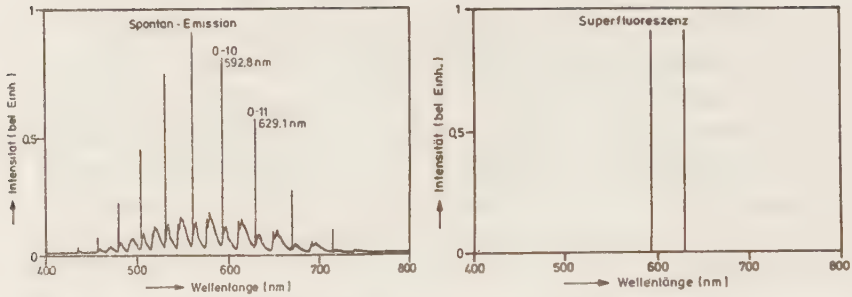

Fig. 10: (links) spontane Emission der O_2^--Zentren im KCl
(rechts) beobachtete Superfluoreszenz der O_2^--Zentren in KCl bei etwa 1000fach geringerem Verstärkungsfaktor der Apparatur gegenüber dem linken Bild

Es soll im folgenden gezeigt werden, daß es sich bei der zusätzlich auftretenden Strahlung um Superfluoreszenz (SF) handelt. Um diese Aussage zu belegen, sollen zunächst einige Beobachtungen zusammengefaßt werden:

Spektral erscheint Superfluoreszenz bei zwei Wellenlängen, die mit den Null-Phononenlinien des spontanen Spektrums übereinstimmen. Hochauflösende Messungen dazu werden später (Kap. 3.4.2) vorgestellt.

Im Zeitbereich erscheint die SF als ein kurzer Puls, der erst nach einer von Schuß zu Schuß schwankenden Verzögerungszeit bezogen auf die Anregung erfolgt. Im Zeitmaßstab ist die SF mindestens um eine Größenordnung schneller als die spontane Lebensdauer.

In einem SF-Puls von der Pulsbreite von etwa 1 ns sind etwa 10^{11} bis 10^{12} Photonen enthalten.

Wird der Anregungsstrahl auf einen dünnen Zylinder fokussiert, so beobachtet man die Superfluoreszenz gleichzeitig in Richtung des transmittierten Anregungspulses und in Gegenrich-

tung (siehe Fig. 11) mit einem Öffnungswinkel, der dem des angeregten Strahlenganges entspricht.

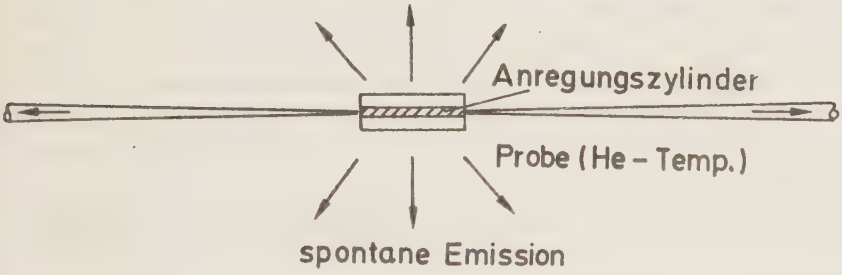

Fig. 11: Streng gerichtete SF-Pulse im Vergleich zur isotropen Abstrahlung der spontanen Emission

Der betrachtete Zylinder entsteht durch Fokussierung des UV-Pulses (266 nm) mit einer 0,5 m Linse und hat etwa einen Durchmesser von 0,1 mm. Bei einer Kristallänge von 1 cm und einer mittleren Zentrenkonzentration von etwa $10^{17} O_2^-/cm^3$ enthält das betrachtete Volumen etwa 6×10^{13} Zentren. Diese Größenordnung ist realistisch. Es kann davon ausgegangen werden, daß in diesem Zylinder die Mehrheit der Zentren angeregt wird. Von den ca. 10^{14} Photonen im Anregungspuls (100 μJ, 266 nm) regen bis 60 % die Zentren innerhalb des betrachteten Volumens an. Von diesen angeregten Zentren tragen etwa 10 % zur SF bei. Dies zeigt sich auch experimentell daran, daß während der SF das Signal der spontanen Emission um etwa 10 % abnimmt.

Die SF-Pulse sind so intensiv, daß deshalb der Nachweis mit der Photodiode empfindlich genug ist und auf den Nachweis mit dem langsamen Photomultiplier verzichtet werden kann.

Durch Veränderung der Anregungsgeometrie (siehe Kap. 3.6) ist es auch möglich, eine ganze Ebene in einen superfluoreszenten Zustand zu versetzen.

Um Laseraktivität auszuschließen (siehe Kap. 3.7), ist darauf geachtet worden, daß die Kristalloberflächen und die Kryostatfenster nicht senkrecht zur Anregungsrichtung der SF-Pulse standen.

3.4.1 Konzentrations- und Temperaturabhängigkeit der Superfluoreszenz

Der Übergang zur Superfluoreszenz hängt kritisch von der Anregungsintensität, der Dotierungskonzentration und der Temperatur ab.

Nach Erreichen der Schwellintensität setzt die SF beispielsweise mit einer gegenüber der spontanen Fluoreszenz mindestens um einen Faktor 10 gesteigerten Gesamtabstrahlungsleistung ein (das vom Empfänger registrierte Signal ist im Fall der SF wegen der geänderten räumlichen und wellenlängenmäßigen Abstrahlungscharakteristik mindestens 10^4 mal größer als im Fall der spontanen Fluoreszenz) und wächst dann bei einer weiteren Steigerung der Anregungsintensität um einen Faktor 2 - 3 nur noch geringfügig.

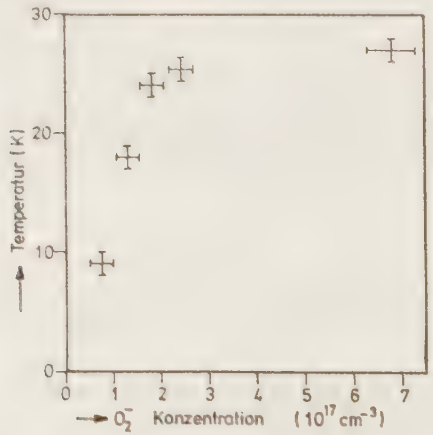

Fig. 12: Kritische Temperatur, unterhalb der die SF-Pulse in Abhängigkeit von der O_2^--Zentrenkonzentration beobachtet werden.

In ähnlicher Weise zeigt das System gegenüber Temperatur und Dotierungskonzentration ein kritisches Verhalten. Superfluoreszenz wurde bei allen Proben nur unterhalb einer Temperatur von ca. 30 K beobachtet, wobei die kritische Temperatur wiederum von der Dotierungskonzentration abhing (Fig. 12). Unterhalb einer Dotierungskonzentration von ca. 8×10^{16} cm^{-3} wurde selbst bei den tiefsten erreichbaren Temperaturen (4,2 K) keine SF beobachtet.

3.4.2 Wellenlängen und Linienbreiten der SF-Pulse im Vergleich zu den Null-Phononenlinien im Spektrum der spontanen Fluoreszenz

Die Wellenlängen und Linienbreiten der SF wurden mit folgendem Versuchsaufbau mit den entsprechenden Größen der Null-Phononenlinien verglichen.

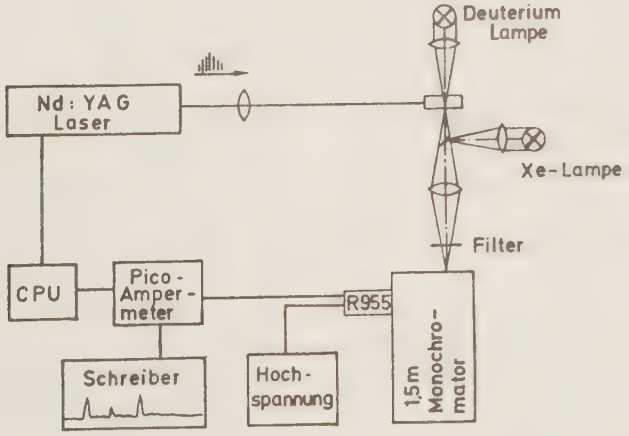

Fig. 13: Experimenteller Aufbau zur Messung der Wellenlängen und Linienbreiten der SF-Pulse (Anregung mit dem Nd:YAG Laser im Takte von 2 Hz). Die entsprechenden Größen der Null-Phononenlinien im Spektrum der spontanen Fluoreszenz sind durch Anregung mit einer Deuteriumlampe gemessen worden. Die Xe-Lampe wird als Wellenlängenreferenz eingespiegelt.

Zur Anregung wurde wahlweise der Nd:YAG-Laser bzw. eine Deuteriumlampe verwendet. Die Deuteriumlampe diente als Anregungsquelle bei statischen Messungen. Die SF-Pulse wurden mit der vierten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers im Takte von 2 Hz angeregt. Die Spektren wurden mit einem 1,5 m Monochromator registriert, deren Auflösungsvermögen innerhalb des interessierenden Wellenlängenbereiches bei 250.000 lag.

Um eine eventuelle Drift der Wellenlänge mit der Temperatur oder einem nicht reproduzierbaren Schlupf im Antrieb zu umgehen, wurde bei jedem Durchlauf eine Wellenlängenreferenz (Xe-Niederdrucklampe) eingeblendet. Der Mikroprozessor diente zur Steuerung und Signalverarbeitung.

Es wäre denkbar, daß die SF-Pulse innerhalb der Linienbreiten der Null-Phononenlinien von etwa 1,2 bis 1,3 cm^{-1} mit unterschiedlichen Wellenlängen auftreten. Abweichend von dieser Annahme hat sich gezeigt, daß die roten und gelben SF-Pulse exakt im Schwerpunkt der dazugehörenden Null-Phononenlinien im Spektrum der spontanen Fluoreszenz liegen.

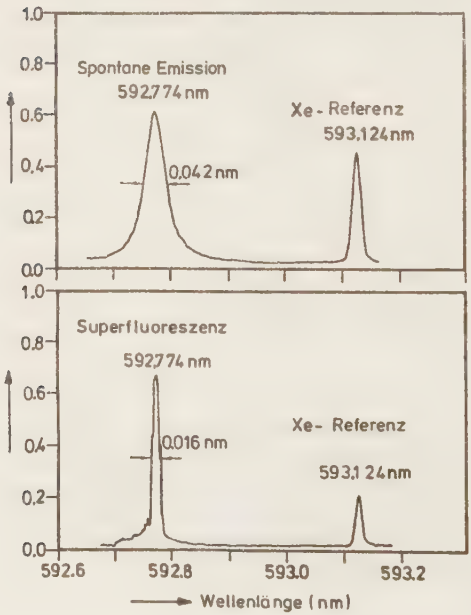

Fig. 14:
(oben): Linienlage und Linienbreite der gelben Null-Phononenlinie (v' = 0 ⟶ v" = 10) der spontanen Emission (Anregung mit der Deuteriumlampe) bei 4,2 K. Die Linie der Xe-Lampe dient als Wellenlängenreferenz.

(unten): Im Vergleich zu oben die entsprechenden Größen der SF-Pulse bei Anregung mit dem Nd:YAG-Laser im Takte von 2 Hz (Originalmessung, anschließend geglättet).

In Fig. 14 werden die Linienlagen und Linienbreiten der spontanen Emission und der SF-Pulse gegenübergestellt. Die Maxima der Null-Phononenlinien wurden innerhalb der Fehlergrenzen bei spontaner Fluoreszenz und SF bei denselben Wellenlängen beobachtet: λ = (592,774 $\pm$ 0,005) nm, bzw. λ = (629,139 $\pm$ 0,005) nm. Die Linienbreite der SF-Pulse ist etwa um den Faktor 4 schmaler als die der Null-Phononenlinie im Spektrum der (0,016 nm im Vergleich zu 0,042 nm siehe Fig. 14) spontanen Emission. Die Linienbreite von 0,016 nm, das entspricht etwa 0,4 cm^{-1}, ist eine obere Grenze. Bei sehr intensiven SF-Pulsen sind auch Linienbreiten von 0,006 bis 0,007 nm gemessen worden (siehe Fig. 15).

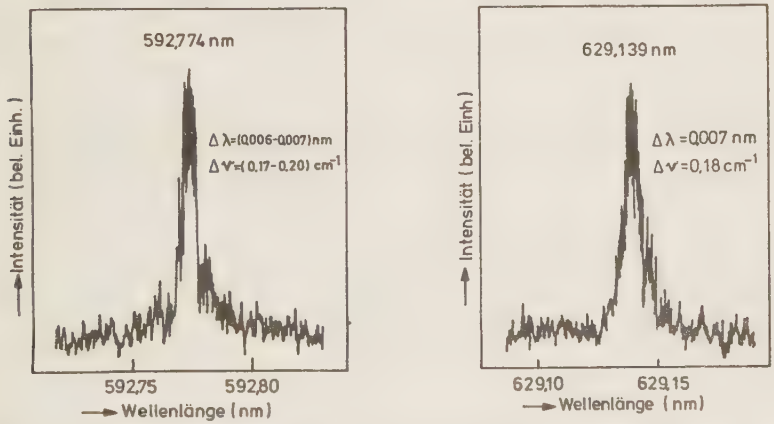

Fig. 15: Originalmessungen der Linienbreiten sehr intensiver SF-Pulse, (links) gelbe Linie, (rechts) rote Linie.

Aus dem Vergleich der Linienlagen und Linienbreiten der SF-Pulse mit den Null-Phononenlinien der spontanen Fluoreszenz konnte festgestellt werden, daß die Schwerpunkte beider Linien exakt aufeinanderliegen. Die Linienbreiten der SF-Pulse sind mindestens um einen Faktor 4 schmaler als die der dazugehörenden Null-Phononenlinien der spontanen Emission.

Die SF-Pulse sind bei geeigneten Anregungsdichten und Zentrenkonzentrationen in KCl-Kristallen bisher nur unterhalb einer Temperatur von 30 K beobachtet worden (siehe Kap. 3.4.1).

Mit dem gleichen experimentellen Aufbau (siehe Fig. 13) sind die Wellenlängen und Linienbreiten der spontanen Fluoreszenz im interessierenden Temperaturbereich bis etwa 30 K bestimmt worden.

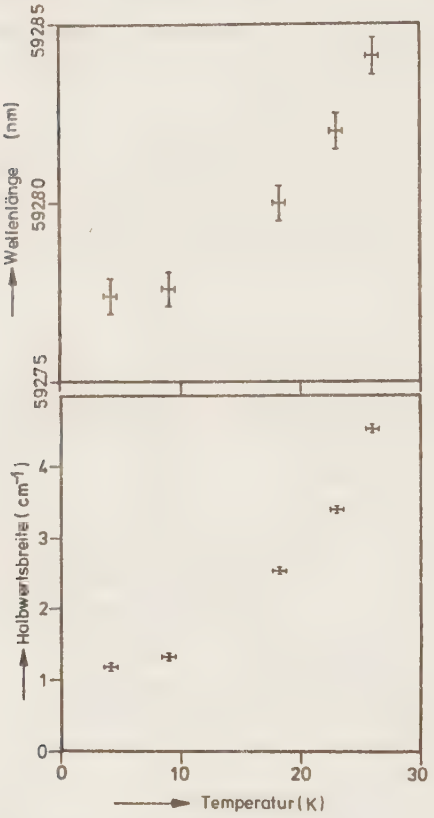

Fig. 16:
Temperaturabhängigkeit der Null-Phononenlinie ($v' = 0 \rightarrow v'' = 10$) aus dem Spektrum der spontanen Fluoreszenz. (Die Anregung erfolgte mit einer Hg-Niederdrucklampe (254 nm). Sonst gilt der gleiche Aufbau wie in Fig. 13 dargestellt).

Temperaturabhängigkeit der Linienbreite der gleichen Null-Phononenlinie

Mit einem hochauflösenden Monochromator konnte eine Konzentrationsabhängigkeit der Linienlagen der Null-Phononenlinien nicht festgestellt werden, jedoch war eine Temperaturabhängigkeit zu erkennen. Die Linienbreiten ändern sich ebenfalls in Abhängigkeit von der Temperatur und stimmen qualitativ mit den von L.A. Rebane gemessenen /55/ überein, jedoch sind die von Rebane gemessenen Linienbreiten um etwa den Faktor 3 größer als in dieser Arbeit. Dies kann auf verschiedene Kristallqualitäten zurückgeführt werden.

3.5 Pulsdauer und Kohärenzeigenschaften

Die mit der Photodiode gemessenen Linienbreiten der SF-Pulse liegen zwischen 0,6 und 6 ns. Die am häufigsten vorkommenden SF-Pulse haben Pulsbreiten von etwa 0,8 ns.

Die Kohärenzzeiten T_c und Kohärenzlängen L_c der SF-Pulse wurden mit einem Michelson-Interferometer (Fig. 17) gemessen. Dabei wird der einfallende Lichtstrahl in zwei Teilstrahlen über einen Strahlenteiler aufgespalten, die gegeneinander um die Zeit Δt verzögert werden. Hat der mit sich selbst interferierende Wellenzug die Dauer T_c, so tritt nur dann eine Interferenzfigur auf, wenn die Verzögerungszeit $\Delta t \leq$ Kohärenzzeit T_c ist.

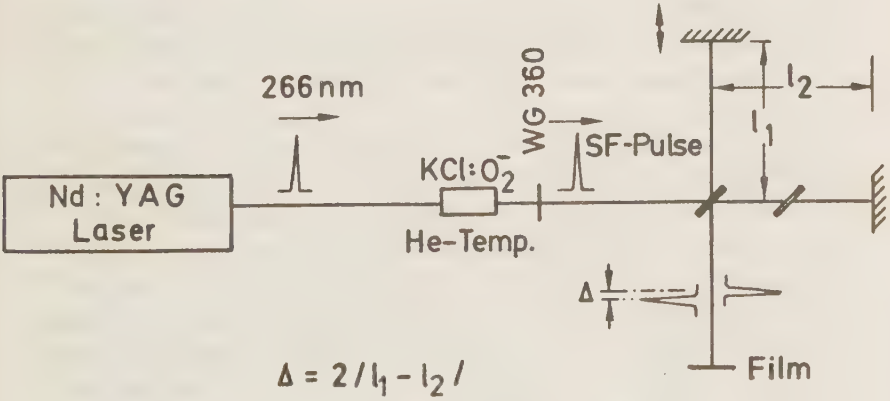

Fig. 17: Michelson-Interferometer zur Messung der Kohärenzzeit T_c der SF-Pulse. Der transmittierte Anregungspuls wird durch ein geeignetes Filter WG 360 (Schott) absorbiert.

Nach Anregung mit dem Nd:YAG-Laser (266 nm) werden die in Vorwärtsrichtung entstehenden SF-Pulse nach Ausblenden des transmittierten Anregungspulses durch das Michelson-Interferometer geschickt. Bei etwa gleichen Armlängen l_1 und l_2 des Aufbaus kann auf dem Bildschirm ein Ringsystem beobachtet werden.

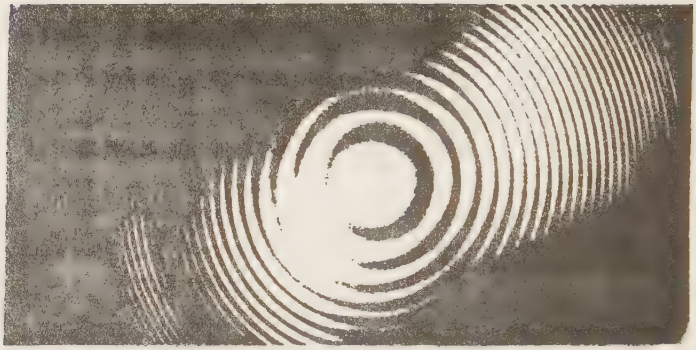

Fig. 18: Interferenzringe eines SF-Pulses, mit dem in Fig. 17 dargestellten Aufbau photographiert.

Das Ringsystem entsteht bei reinen roten SF-Pulsen und bei reinen gelben SF-Pulsen. Beim gleichzeitigen Aufkommen beider Farben enthält das Ringsystem konzentrisch farbabgestufte Ringe. Es verschwindet durch Verstellen des Armes um $\pm$ (9 $\pm$ 1 mm) in beiden Richtungen, d.h. es ist innerhalb Δl_1 = 18 $\pm$ 2 mm sichtbar. Daraus resultiert eine mittlere Wegdifferenz Δ von (36 $\pm$ 4) mm und eine mittlere Kohärenzzeit von (120 $\pm$ 1,3) ps. Die Beurteilung, wann die Interferenzstruktur verschwindet, erfolgte mit bloßem Auge und ist wegen der unvermeidbaren subjektiven Beurteilungsunterschiede ungenau. Weiterhin fallen auch nur die am häufigsten auftretenden intensiven SF-Pulse ins Gewicht, so daß aus diesen Beobachtungen nur eine untere Schranke der Kohärenzzeit $T_c > 100$ ps und Kohärenzlänge $L_c > 3$ cm angegeben werden kann.

Nimmt man an, daß die Halbwertszeit der Superfluoreszenz identisch mit dieser Kohärenzzeit ist, so kann man die danach zu erwartende Linienbreite durch Fouriertransformation abschätzen:

$$\Delta\omega \geq \frac{2}{T_c} \quad \text{bzw.} \quad \Delta\bar{\nu} \geq \frac{1}{c\pi T_c} = 0{,}11\,\text{cm}^{-1} \qquad (8)$$

Dieser Wert stimmt recht gut mit der in Fig. 15 beobachteten minimalen Linienbreite von ca. 0,2 cm^{-1} überein.

Der kohärente durchgehende Wellenzug hat eine Länge von $L_c > 3$ cm. Das bedeutet umgekehrt, daß während der Kohärenzzeit auch die Frequenz konstant ist, also kein "frequency chirping" /E 1/ auftritt.

Weiterhin hat sich gezeigt, daß auch die beiden SF-Pulse in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung erwartungsgemäß ebenfalls miteinander zur Interferenz gebracht werden können.

3.6 Andere Anregungsgeometrien

Bei Anregung der Superfluoreszenz mit einer Bikonvexlinse innerhalb eines dünnen "bleistiftartigen" Volumens erhält man in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung wenig divergente Superfluoreszenzpulse, die auf einem Schirm radialsymmetrische Leuchtflecke erzeugen. Dieses "saubere" Modenverhalten ist nicht immer zu beobachten.

Durch Verschieben der Anregungslinse ändert sich im Anregungszylinder die Anregungsdichte der Zentren. Die dabei auftretenden Farbumschläge rot/gelb werden in einem gesonderten Kapitel (5.4) behandelt. Bei einigen Kristallstücken konnte außerdem beobachtet werden, daß mit dieser Anordnung bei gewissen Anregungsdichten Superfluoreszenzpulse quer zur Anregungsrichtung auftreten können. Dies ist offenbar an Kristallen mit inhomogenem Einbau der Zentren zu beobachten. Mit einer Zylinderlinse im Anregungsstrahlengang läßt sich die Querradianz begünstigen. Durch Verändern des Abstandes der Zylinderlinse zum Kristall ist es möglich, von der üblichen SF in Vor- und Rückwärtsrichtung zur Quersuperfluoreszenz bis schließlich zur Rundumsuperfluoreszenz in einer Ebene zu gelangen und umgekehrt. Bei der Superfluoreszenz in allen radialen Richtungen innerhalb einer Ebene ist ringsherum ein senkrecht zur Ausbreitungsrichtung vertikales Strichmuster beobachtet worden. Die Polarisationsrichtung, jedoch, war bevorzugt horizontal in der Ebene.

Gehen wir noch einmal zurück zur Standardanregung mit einer Bikonvexlinse. Bei den meisten Messungen hatten die SF-Pulse eine glatte Einhüllende. Bei einigen Kristallen entstanden aus einem Anregungszylinder in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung jeweils zwei eng benachbarte, punktförmige Flecken. In so einem Fall zeigte die SF im Zeitbereich eine Überstruktur, die auf eine Schwebung hindeutet. Die Schwebungsfrequenz liegt im GHz-Bereich (Fig. 19 b) bei etwa 0,1 cm^{-1}. Im Wellenlängenmaßstab (Kap. 3.4.1) zeigten diese Kristallstücke statt einer einzigen SF-Linie auch zwei Linien mit von Kristall zu Kristall

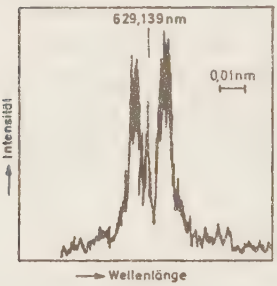

Fig. 19 a:

Linienlage und Linienbreite der roten SF-Pulse bei Anregung (siehe Fig. 13) mit dem Nd:YAG-Laser im Takte von 2 Hz. Der Schwerpunkt der SF-Wellenlänge wird durch Fabry-Perot Interferenzen über die Kristallflächen selber unterdrückt (Kristall als Etalon).

Fig. 19 b:

Bildet der Kristall ein Etalon, dann kann im Zeitverhalten des SF-Pulses eine Überstruktur (Schwebung zweier Frequenzen) beobachtet werden.

unterschiedlichen Abständen. In Fig. 19 a ist ein Beispiel gezeigt. Der Linienabstand beträgt 0,3 cm^{-1}. Diese Beobachtung kann folgendermaßen gedeutet werden: Bei besonders ebenen Spaltflächen des 1 cm langen Kristalls bildet der Kristall für die SF-Pulse ein Etalon. Der freie Spektralbereich bei senkrechtem Einfall liegt in der Größenordnung der SF-Linienbreite. Das Meßergebnis in Fig. 19 a und b kann beobachtet werden, wenn das Transmissionsminimum des Etalons exakt mit der SF-Wellenlänge übereinstimmt. In diesem Fall wird in der Startphase der SF genau diese Wellenlänge durch Fabry-Perot Interferenzen unterdrückt.

3.7 Abgrenzung der Superfluoreszenz zum Laser

Die Fragestellung, ob es sich um Laseraktivität handelt, ist nicht unbegründet. Sorgfältig gespaltene, versetzungsfreie Kristalle haben parallele Spaltflächen hoher Güte, an denen Rückkopplung stattfinden kann. Weiterhin besteht zusätzlich die Möglichkeit der Rückkopplung über die Kryostatfenster.

Laseraktivität durch Rückkopplung an den Kristalloberflächen ist nur möglich, solange der in sich selbst reflektierte Strahl im Innern des Anregungsvolumens verläuft. Dann müßte durch Drehen des Kristalls um den Winkel φ (Fig. 20) der Laserfleck auf einem Schirm um den gleichen Winkel α wandern. Der experimentell ermittelte Zusammenhang ist in Fig. 21 in einem Diagramm dargestellt. Als Abszisse ist der Drehwinkel φ und als Ordinate der Ablenkwinkel α aufgetragen. Bei kleinen Drehwinkeln bleibt die Richtung der SF-Pulse nahezu senkrecht zur Kristallfläche ($\varphi = \alpha$). Die rückgekoppelten Photonen lösen eine "getriggerte Superfluoreszenz" (siehe Kap. 5.3) aus. Erst dann, wenn die rückgekoppelten Photonen nicht mehr in den Anregungskanal gelangen (bei φ etwa $|5^{\circ}|$), startet die Superfluoreszenz selbsttätig.

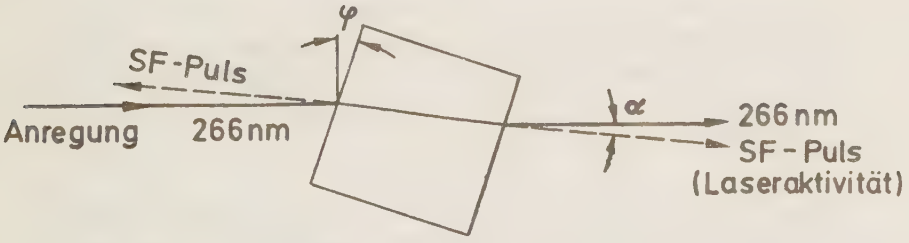

Fig. 20: Streugeometrie bei gedrehtem Kristall

Innerhalb eines Übergangsbereiches sind zwei SF-Flecken zu sehen, bis schließlich in Abhängigkeit von φ die getriggerte SF verschwindet. Der Umschlagbereich ist von Probe zu Probe unterschiedlich (gestrichelter Bereich). Er wird von der

Oberflächengüte der Probe, von der Konzentration und Anregungsdichte der Zentren und von der Geometrie des Anregungs-

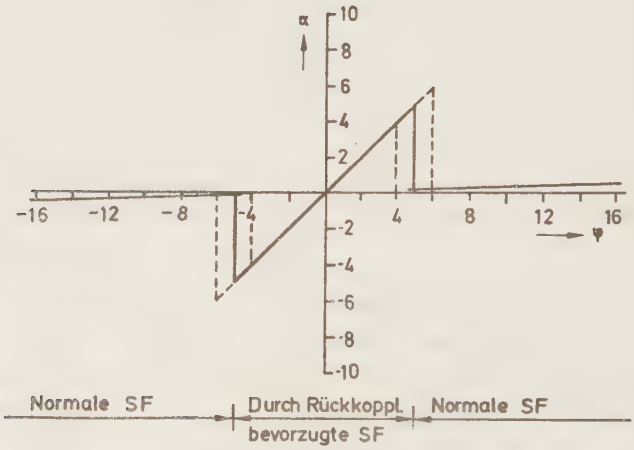

Fig. 21: Abgrenzung der normalen Superfluoreszenz bei Winkeln $\varphi \gtrsim |5^{\circ}|$ zur Superfluoreszenz, die durch Rückkopplung der Photonen an den Kristalloberflächen $\varphi \leq |5^{\circ}|$ erfolgt. Die rückgekoppelten Photonen beeinflussen die Startbedingungen und triggern den SF-Puls.

kanals bestimmt. Nach dem Umschlag ändert sich α nur noch geringfügig aufgrund der verschiedenen Brechungsindizes /86/ für den Anregungspuls n_B (266 nm) = 1,5727 und für den SF-Puls n_B (630 nm) = 1,4880. Bei $\varphi \sim 10^{\circ}$ wird die Ablenkung um den Winkel $\alpha \sim 0{,}4^{\circ}$ sein.

Laseraktivität könnte nach Fig. 21 nur bei kleinen Winkeln auftreten. Die beobachtete Pulsdauer der SF-Pulse von etwa 1 ns mit etwa 10^{12} Photonen pro Puls können nur durch Laserbetrieb über die Kristalloberflächen erklärt werden, wenn man unrealistisch große Verstärkungsfaktoren annimmt. Denn mit 10^{12} Photonen in so einem Puls kann unter Annahme, daß die Kristalloberflächen einen Reflexionsgrad von etwa 5 % haben, die mittlere Kleinsignalverstärkung in folgender Weise abgeschätzt werden:

Bei einer Kristallänge L von etwa 1 cm und einem Brechungsindex von $n_B \sim 1{,}5$ würden innerhalb der Pulsbreite von 1 ns etwa 20 Durchläufe erfolgen. Dabei wird das Signal bei jedem Durchlauf nur mit r = 5 % an den Kristalloberflächen reflektiert. Aus der Beziehung

$$(r \cdot e^{gL})^{20} = 10^{12} \qquad (9)$$

errechnet sich mit den genannten Zahlen eine Kleinsignalverstärkung g von 4,4 1/cm.

Dieser Verstärkungsfaktor ist so groß, daß bei diesen Lebensdauern und spektralen Eigenschaften erfahrungsgemäß diese Intensität nicht über verstärkte spontane Emission (amplified spontaneous emission) erreicht werden kann.

Wenn die Startbedingungen der SF-Pulse sich durch Rückkopplung der spontanen Photonen an den Kristalloberflächen beeinflussen läßt (siehe Bildunterschrift zu Fig. 21), dann muß sich die SF auch extern triggern lassen. Experimente zur getriggerten Superfluoreszenz werden in Kap. 5.3 näher beschrieben.

4.0 Theoretische Betrachtungen

4.1 Übersicht

Experimentell hat sich gezeigt, daß die Relaxationszeit τ_1 im angeregten Zustand kleiner als 150 ps ist. Vom relaxierten angeregten Zustand erfolgt danach die spontane Emission im Wellenlängenbereich von 400 nm bis 800 nm in vibronische Niveaus des Grundzustands und nach dem bekannten exponentiellen Zeitverhalten mit einer Halbwertszeit von 47,5 ns bei 300 K bis zu 81,5 ns bei 4,2 K.

Bei hohen Anregungsdichten und bei Temperaturen unterhalb 30 K konnte zusätzlich zur spontanen Emission Superfluoreszenz bei zwei Übergängen in vibronische Niveaus beobachtet werden. Bei der Superfluoreszenz handelt es sich um kooperative Strahlung. Die einzelnen Moleküle emittieren nicht unabhängig voneinander wie im spontanen Fall, sondern koppeln zu einem Gesamtzustand.

Zur Vereinfachung wird im folgenden nur ein einziger Übergang, der superfluoreszent abstrahlen kann, betrachtet (siehe Fig. 22). τ_1 und τ_2 sind die Relaxationszeiten im angeregten und im Grundzustand. W_1, W_{12} und W_2 sind die Übergangswahrscheinlichkeiten.

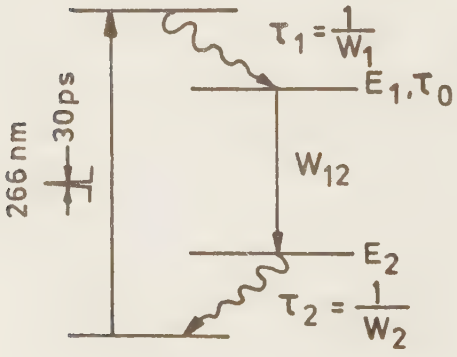

Fig. 22:
Vereinfachtes Niveauschema
(Reduzierung auf nur einen isolierten Übergang, der superfluoreszent abstrahlen kann)

Für eine qualitative Beschreibung der Entwicklung eines Superfluoreszenzpulses von einem Gesamtzustand genügt es zunächst, von einem idealen Zwei-Niveau-System auszugehen. Das heißt, es wird angenommen, daß $\tau_1 = 0$ und $\tau_2 = \infty$ sind.

Es läßt sich zeigen/124, 125, 126, 129/, daß sich ein Zwei-Niveau-System quantentheoretisch wie ein Spin-1/2-System beschreiben läßt. Die Kopplung von Einzelspins zu einem Gesamtzustand wurde 1950 erstmals von Hahn /118, 119/ diskutiert. Er zeigte, daß die Phasenkopplung der Komponenten der Einzelspins senkrecht zum Magnetfeld durch Anlegen eines schwachen Radiofrequenzfeldes in Resonanz mit dem Übergang erzwungen werden kann. Der Aufbau und Abfall dieser Gesamtmagnetisierung senkrecht zum homogenen Feld läßt sich mit Induktionsspulen messen. Diese Arbeiten und die Experimente zum Spin-Echo an Kernspins /120/ waren wohl Anstoß zur ersten theoretischen Arbeit über Superfluoreszenz /130/ von Dicke im Jahre 1954.

Die Beschreibung der Superfluoreszenz nach Dicke erfolgt in Kap. 4.2. Die Grenzen des Dickeschen Bildes werden deutlich, wenn man von der Nährung $\tau_1 = 0$ und $\tau_2 = \infty$ zu realistischen Zeiten übergeht. Die Einbeziehung der Relaxationsprozesse bei der Beschreibung der SF der O_2^--Zentren im KCl folgt dann in Kap. 4.3.

4.2 Dicke-Superfluoreszenz

Superfluoreszenz wird die kooperative Emission eines völlig invertierten Systems ursprünglich unkorreliert angeregter Atome oder Moleküle genannt.

Der Anschaulichkeit halber werden die Zwei-Niveau-Moleküle im Spinbild betrachtet. Die Zahl N der kooperierenden Moleküle muß groß sein ($N \gg 1$). Sie sollen jedoch alle dem gleichen elektromagnetischen Feld ausgesetzt sein. Das heißt, die Abstände der Moleküle zueinander müssen klein im Vergleich zur Wellenlänge sein. Alle beteiligten Moleküle sollen eine genügend lange spontane Lebensdauer bei exakt gleichen Resonanzfrequenzen haben. Dann koppeln die Moleküle zu einem Ge-

samtspin j (vorausgesetzt: phasenzerstörende Prozesse sind vernachlässigbar).

j ist die Summe über alle beteiligten Spins j_i innerhalb eines Kooperationsvolumens unabhängig davon, ob sie sich im angeregten Zustand E_1 oder im Grundzustand E_2 befinden, und wird nach Dicke Kooperationszahl genannt. m ist ein Maß für die Inversion. Dicke bezog die Dichte ϱ der kooperierenden Moleküle auf Volumina der Größenordnung von λ^3.

Bei einer Dichte ϱ der kooperierenden Moleküle innerhalb des Kooperationsvolumens λ^3 ist

$$j = \varrho \cdot \lambda^3/2 = N/2 = (\varrho_1 + \varrho_2)\lambda^3/2 = (N_1 + N_2)/2 \qquad (10)$$

und

$$m = j_z = (\varrho_1 - \varrho_2)\lambda^3/2 = (N_1 - N_2)/2 \qquad (11)$$

$N_1 = \varrho_1 \lambda^3$ ist die Zahl der kooperierenden Moleküle im angeregten Zustand und $N_2 = \varrho_2 \lambda^3$ die Zahl im Grundzustand. m kann die Werte zwischen $-j \leq m \leq j$ einnehmen.

Die Komponenten dieses Gesamtspins erfüllen die normalen Vertauschungsrelationen zwischen den Drehimpulskomponenten. Die nicht verschwindenden Matrixelemente der Operatoren $\underline{J}^2$, $\underline{J}_x$, $\underline{J}_y$ und $\underline{J}_z$ haben in der Darstellung, in der $\underline{J}_z$ und $\underline{J}$ diagonal sind, die Form:

$$\begin{aligned} \langle m,j \,|\, \underline{J}^2 \,|\, m,j \rangle &= j(j+1) \\ \langle m,j \,|\, \underline{J}_z \,|\, m,j \rangle &= m \end{aligned} \qquad (12)$$

$$\langle m,j \,|\, \underline{J}_x + i\underline{J}_y \,|\, m-1,j \rangle = \langle m-1,j \,|\, \underline{J}_x - i\underline{J}_y \,|\, m,j \rangle = \sqrt{(j+m)(j-m+1)}$$

Gemäß der Auswahlregel des Gesamtzustands $\Delta m = \pm 1$ erfolgt die Emission nach vollständiger Inversion in Kaskaden. Die Intensitäten der einzelnen Übergänge bei konstantem j sind

$$I = W_{12}(j+m)(j-m+1) = W_{12} \cdot N_1 (N_2 + 1) \qquad (13)$$

W_{12} ist die Übergangswahrscheinlichkeit des betrachteten Übergangs $E_1 \rightarrow E_2$. Zum Zeitpunkt t = 0 ist $N_1 = N$ und $N_2 = 0$, und die Intensität ist proportional zu N (spontaner Zerfall). Befindet sich jedoch schon ein Molekül im Zustand E_2, dann ist die Intensität für das nächste Photon aus E_1 schon größer als im spontanen Fall:

$$I = W_{12} \cdot N_1 (N_2 + 1) \xrightarrow[N_2 = 1]{N_1 = N-1} I = W_{12} (2N - 2) \qquad (14)$$

Allgemeiner wird das obere Niveau nach folgender Ratengleichung entvölkert:

$$\dot{N}_1 = -W_{12} \cdot N_1 (N_2 + 1) \qquad (15)$$

Die Intensität wird mit zunehmender Entvölkerung des oberen Niveaus größer

$$I = W_{12} \cdot N_1 (N_2 + 1) \qquad (16)$$

und erreicht einen Maximalwert $I = W_{12} (N^2/4)$ bei $N_1 = N_2 = N/2$. In dem Maße, wie das obere Niveau entleert wird, erfolgt die Besetzung im unteren Niveau:

$$\dot{N}_1 = -\dot{N}_2 \qquad (17)$$

Diese Ratengleichungen lassen sich leicht numerisch lösen. In Fig. 23 sind diese Ratengleichungen für $W_{12} = 10^{-6}$ 1/s und einer realistischen Zahl kooperierender Moleküle von $N = 5 \times 10^4$ bei einer abstrahlenden Wellenlänge von $\lambda = 630$ nm graphisch dargestellt. Im Gesamtspinbild läßt sich die zeitliche Entwicklung der Besetzungszahlen N_1, N_2 und der SF-Intensität veranschaulichen.

N ist die Gesamtzahl der kooperierenden Moleküle im betrachteten Kooperationsvolumen $\lambda^3 = (630\ \text{nm})^3$. Die Entvölkerung von E_1 und der Auffüllprozeß von E_2 erfolgt zuerst langsam. Jedoch bereits nach etwa 1 ns (eine fast zu vernachlässigende

Zeit im Vergleich zur Abklingzeit der spontanen Emission) befinden sich alle kooperierenden Moleküle im Zustand E_2. Die

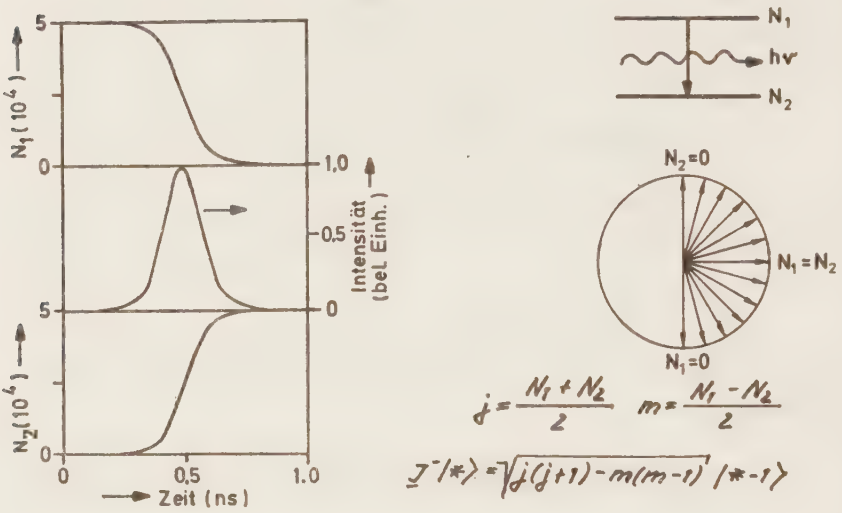

Fig. 23: Zeitliche Entwicklung der Superfluoreszenz (links) mit dazugehöriger Analogie zum Gesamtspin (rechts)

Intensität der Emissionslawine erreicht ihren Maximalwert bei Gleichbesetzung $N_1 = N_2$.

Das Maximum der Intensität wird erst nach einer Verzögerungszeit t_d erreicht und befindet sich exakt an der Stelle $N_1 = N_2 = N/2$. Aus dem Verlauf von N_1 als Funktion der Zeit kann man auch erkennen, daß anfangs die Abnahme pro Zeiteinheit sehr langsam vor sich geht und mit der Entvölkerung der spontanen Emission vergleichbar ist.

Durch Variation der Anregungsdichte ändert sich im Dicke-Bild die Zahl der im betrachteten Kooperationsvolumen koppelnden Moleküle und damit die Kooperationszahl j. Nach Dicke ist für einen SF-Puls die Verzögerungszeit $t_d \sim (1/N)\ \ln N$,

$$\begin{aligned} &\text{die Pulsbreite} && t_p \sim 1/N \\ &\text{und die Intensität} && I \sim N^2 \end{aligned} \qquad (18)$$

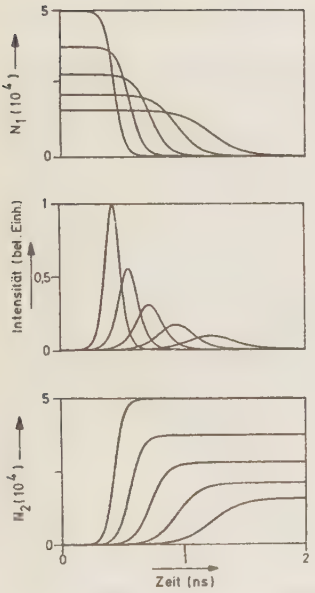

Fig. 24:
Änderung der Superfluoreszenz in Abhängigkeit der Zahl N der kooperierenden Moleküle. Bei Verringerung von N um den Faktor $1/\sqrt{2}$ fällt die Intensität auf die Hälfte ab, und die Verzögerungszeit t_d wird um etwa $\sqrt{2}$ wie die Pulsbreite t_p größer.

In Fig. 24 ist dieser Zusammenhang anhand der Ratengleichungen graphisch dargestellt. Wie in Fig. 23 bereits gezeigt, ist die Verzögerungszeit t_d eines SF-Pulses bei $N = 5 \times 10^4$ Molekülen etwa 0,5 ns. Mit fallender Anregungsdichte erniedrigt sich die Zahl N der kooperierenden Moleküle innerhalb λ^3 und damit auch die Verzögerungszeit t_d und die Pulsbreite t_p. Die Zahl N wurde jeweils um den Faktor $1/\sqrt{2}$ verkleinert. Die Verzögerungszeiten und die Pulsbreiten werden etwa um den Faktor $\sqrt{2}$ größer, und die Intensitäten fallen auf den halben Wert ab, wie zu erwarten war.

Die experimentell beobachteten Schwankungen der Verzögerungszeiten beruhen zusätzlich auf den Fluktuationen in den Anfangsbedingungen, die in den weiterführenden Arbeiten zur Theorie der SF ausführlich diskutiert werden.

Dem theoretisch interessierten Leser soll anhand einer umfangreichen Literaturliste /130 - 185/ die Möglichkeit zur Vertiefung gegeben werden. Eine gut kommentierte Zusammenfassung

der bisher erschienenen theoretischen Arbeiten zur SF geben M. Gross und S. Haroche /E1/.

Etwa 15 Jahre nach Dickes grundlegender Arbeit erschienen die ersten Folgearbeiten zur Superfluoreszenz /131 - 134/, die hauptsächlich von der Startbedingung $N_1 = N_2$ (Superstrahlung) ausgingen. Nach kohärenter Anregung folgt instantan ohne Verzögerungszeit die kohärente Strahlung. Die hier vorliegenden Startbedingungen der SF (totale Inversion der Zentren) und die dadurch automatisch mit zu berücksichtigende spontane Emission sind ab 1970 durch Bonifacio und Schwendimann /135, 136/ behandelt worden. Die Einbeziehung der Quantenfluktuation während des Starts der SF stammt von Bonifacio, Schwendimann und Haake /141, 142/, von Glauber und Haake /158, 161, 164, 169, 170/ und anderen Autoren /139, 163, 180, 181, 182/.

4.3 Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl

Eine geschlossene Theorie zur Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl existiert noch nicht. Um die Experimente zu deuten, ist es nötig, die Vorstellungen der Dickeschen SF zu erweitern. Dicke hat in seiner Theorie der Superfluoreszenz /130/ die kohärenzzerstörenden Prozesse unberücksichtigt gelassen.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Modellrechnungen sollen zum qualitativen Verständnis der SF der O_2^--Zentren im KCl beitragen. Sie sollen lediglich ein Gefühl für die Tendenz vermitteln und sollen nicht als ein Versuch zu einer geschlossenen Theorie angesehen werden.

Im vereinfachten Niveauschema (Fig. 22) muß abweichend von idealisierenden Annahmen $\tau_1 = 0$ und $\tau_2 = \infty$ für das O_2^--Zentrum im KCl berücksichtigt werden, daß die Relaxationszeit $\tau_1 \neq 0$ ist, jedoch kleiner als 150 ps. Erfahrungsgemäß liegt die Relaxationszeit τ_2 im Grundzustand in der gleichen Größenordnung wie τ_1. Diese Relaxationszeiten müssen bei der qualitativen Beschreibung der SF anhand von Ratengleichungen berücksichtigt werden.

4.3.1 Beeinflussung der Superfluoreszenz durch den Relaxationsprozeß im angeregten Zustand

Die Einbeziehung der Relaxationszeit τ_1 des angeregten Zustands verschiebt auf den ersten Blick lediglich den Startzeitpunkt der Superfluoreszenz um die Relaxationszeit τ_1 .

Die Situation ist jedoch nicht so einfach. Die bisherigen Experimente zur Temperaturabhängigkeit und Konzentrationsabhängigkeit der SF-Pulse (siehe Kap. 3.4.1) haben gezeigt, daß oberhalb einer kritischen Temperatur von ca. 30 K bei ausreichender O_2^--Zentrenkonzentration und Laseranregungsenergie keine SF-Pulse zu beobachten waren. Andererseits ist der Relaxationsprozeß im angeregten Zustand mit einem hohen Energieübertrag ans Wirtsgitter verbunden. Es handelt sich dabei um etwa ein Viertel der Anregungsenergie. Bei Anregungspulsen von 80 bis 100 μJ sind das Energien ΔE zwischen 20 und 25 μJ. Nach der Anregung wird das System in vibronische Niveaus versetzt ($v' \sim 29$) mit Abständen von etwa 160 cm^{-1}. Diese Energie befindet sich in Resonanz mit den optischen Phononen /88, 89/. Während der ersten Schritte wird das System lokal so stark aufgeheizt, daß die Folgeschritte danach so schnell erfolgen können. Übersteigen die damit verbundenen lokalen Temperaturerhöhungen die kritische Temperatur, dann wird der Startzeitpunkt der SF zusätzlich noch um eine Abkühlzeit τ_h verschoben.

Im folgenden soll die mit dem Relaxationsprozeß verbundene Temperaturerhöhung abgeschätzt werden:

Die thermische Energie ΔE von 20 bis 25 μJ wird von den O_2^--Zentren im Inversionszylinder mit einem Volumen von $7{,}85 \times 10^{-5} cm^3$ (das entspricht einer Kristallänge von 1 cm und einem Durchmesser des "Bleistifts" von 0,1 mm). In diesem Volumen befinden sich etwa 2×10^{-6} mol KCl. Die spezifische Wärme der Alkalihalogenide in Abhängigkeit von der Temperatur ist bereits bekannt /87/ (siehe Fig. 25 a). Man kann davon ausgehen, daß in etwa zu jedem O_2^--Zentrum 8 KCl Einheitszellen gehören.

Die den O_2^--Zentren lokal zugeführte Energie ΔE wird gleichmäßig auf 8 KCl Einheitszellen übertragen.

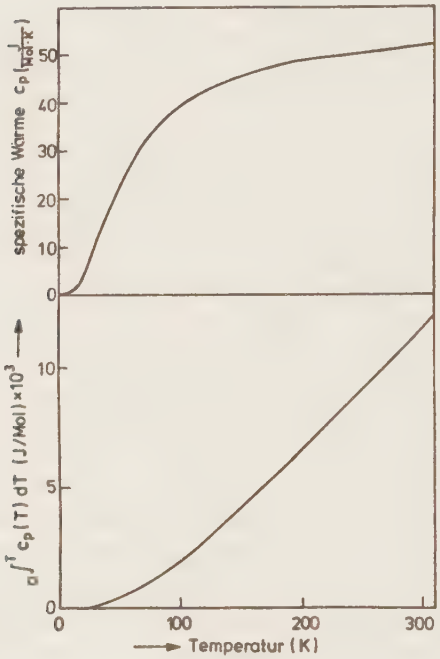

Fig. 25 a:
Temperaturabhängige spezifische Wärme für Kaliumchlorid /87/

Fig. 25 b:
Bestimmtes Integral der spezifischen Wärme über die Temperatur T

Es gilt: $$\Delta E = I \cdot X = \int_0^T c_p(T)\,dT \cdot X \qquad (19)$$

Die spezifische Wärme $c_p(T)$ und I sind in Fig. 25 a/b aufgetragen. Mit den genannten Zahlenwerten von $\Delta E = (20/8)\,\mu J$ bis $(25/8)\,\mu J$ erhält man ein I von etwa 1,2 bis 1,4 J/mol und nach Fig. 25 b eine lokale Aufheizung bis zu Temperaturen um etwa 85 K.

Die lokale Aufheizung während der Relaxation übersteigt deutlich die kritische Temperatur der SF. Dadurch kann die SF entweder verzögert oder verhindert werden. Anhand von weiterführenden Experimenten (siehe Kap. 5.1) werden die Auswirkungen der lokalen Aufheizung auf die Verzögerungszeiten der SF diskutiert.

4.3.2 Beeinflussung der Superfluoreszenz durch den Relaxationsprozeß im Grundzustand

Es wäre naiv, beim Wissen über die Konzentrations- und Temperaturabhängigkeit der Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl (siehe Kap. 3.4.1) daran festzuhalten, daß die Relaxationsprozesse im Grundzustand keinen Einfluß auf die Superfluoreszenz haben. Auf den ersten Blick leuchtet nicht ein, warum die SF erst ab Zentrenkonzentration über $8 \times 10^{16}/cm^3$ zu sehen ist und warum noch zusätzlich eine kritische Temperatur, ebenfalls konzentrationsabhängig, existiert.

Die Beeinflussung der SF durch Berücksichtigung eines Relaxationsmechanismus im Grundzustand kann qualitativ anhand von Ratengleichungen herausgearbeitet werden. Dicke bezog sich bei seinen Rechnungen immer auf Volumina kleiner als λ^3. Bei Übergängen der kernmagnetischen Resonanz ist diese Bedingung realistisch. Bei Übergängen im optisch sichtbaren Bereich ist es sinnvoll, mit Dichten zu rechnen. Dann ergeben sich folgende Ratengleichungen, die für die folgenden qualitativen Modellvorstellungen für Volumina der Größe λ^3 gelöst werden sollen:

$$\lambda^3 \dot{\varrho}_1 = -W_{12} \lambda^3 \varrho_1 (\varrho_2 \lambda^3 + 1) \qquad (20)$$

$$\lambda^3 \dot{\varrho}_2 = W_{12} \lambda^3 \varrho_1 (\varrho_2 \lambda^3 + 1) - \frac{1}{\tau_2} \varrho_2 \lambda^3 \qquad (21)$$

Zusätzlich zu den bisherigen Ratengleichungen ist in Gleichung (21) der Relaxationsprozeß im Grundzustand durch die Relaxationszeit $\tau_2 = (1/W_2)$ eingeführt worden. Dagegen ist nach wie vor der Relaxationsprozeß im angeregten Zustand, der wie in Kap. 4.3.1 nur zu einer systematischen Verzögerung führt, unberücksichtigt geblieben.

Die Entwicklung der Superfluoreszenz in Abhängigkeit vom Relaxationsprozeß im Grundzustand kann Fig. 26 entnommen werden. Mit einer Anregungsdichte von $\varrho = 2 \times 10^{17}/cm^3$ ($\hat{=} 5 \times 10^4/\lambda^3$) entwickelt sich die SF-Intensität bei einer Relaxationszeit von $\tau_2 = 100$ ps (a) im gewohnten Bild mit einer Verzögerungszeit von etwa $t_d = 0{,}5$ ns. Mit fallender Relaxationszeit, jeweils um den Faktor 0,707 von (a) bis (f) (s. Fig. 26) nimmt die Inten-

sität der SF ab, bis sie bei τ_2 = 17,5 ps völlig verschwindet. Daraus läßt sich eine Bedingung für die Superfluoreszenz der O_2^--Zentren ableiten. Die Relaxationszeit τ_2 muß einen Grenzwert überschreiten.

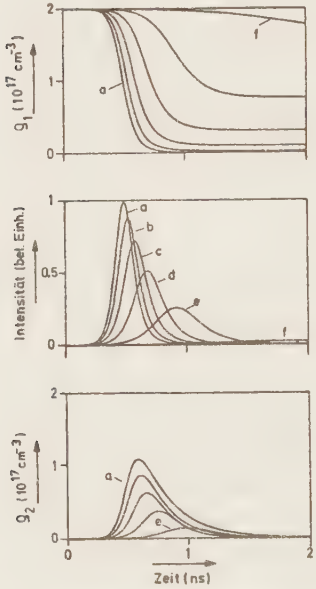

Fig. 26:
Zeitliche Entwicklung der Dichte g_1 der kooperierenden Zentren im Zustand E_1, der Dichte g_2, der kooperierenden Zentren in E_2 und der SF-Intensität in Abhängigkeit von der Relaxationszeit τ_2 im Grundzustand.

τ_2 wird von 100 ps (a) jeweils um den Faktor 0,707 verringert bis zu 17,5 ps (f). Mit fallender Relaxationszeit τ_2 nimmt die Intensität ab, bis sie bei τ_2 = 17,5 ps völlig erlischt (f).

Im folgenden soll versucht werden, die Größenordnung dieses Grenzwertes abzuschätzen. Die Zentrenkonzentration von g = 2 x 10^{17}/cm^3 liegt etwa um den Faktor 3 bis 4 unter der höchsten O_2^--Dotierung, bei der SF beobachtet wurde. Bei der in Fig. 26 wiedergegebenen Modellrechnung wurde eine Übergangswahrscheinlichkeit von 10^6/s angenommen. Geht man von einer (nach den experimentellen Ergebnissen realistischen) Gesamtoszillatorenstärke des O_2^--Zentrums von f ~ 1 (bei einer Quantenausbeute von ebenfalls ungefähr 1) aus, von der etwa 1 % auf den betrachteten Null-Phononenübergang entfallen, so ergibt sich aus der gemessenen Lebensdauer des angeregten Zustands von 82 ns eine Übergangswahrscheinlichkeit von ca. 1,2 x 10^5/s. Der Relaxationsprozeß im unteren Zustand müßte dementsprechend noch etwas langsamer ablaufen. Wir erhalten damit eine untere Grenze für das τ_2 von etwa $\tau_2 \leq 50$ ps. Bei schnelleren Relaxationszeiten würde keine SF von O_2^--Zentren im KCl beobachtet. Diese Größenordnung stimmt auch mit den Untersuchungen von Schwendimann /186/ überein.

Die experimentellen Ergebnisse (siehe Fig. 12) haben gezeigt, daß für das Aufkommen der SF-Pulse eine kritische Temperatur T_k unterschritten werden muß. Im Rahmen der Simulation wäre dies mit einer temperaturabhängigen Relaxationszeit τ_2 zu verstehen. Innerhalb des zu berücksichtigenden Temperaturbereichs von 4,2 K bis etwa 30 K ist erfahrungsgemäß keine große Änderung von τ_2 zu erwarten. Auch bei genügend hoher Relaxationszeit τ_2 ist es möglich, daß die SF-Pulse bei ausreichender Anregungsdichte nicht zu beobachten sind. Dies ist z.B. möglich, wenn die Phasenverlustzeit der kooperierenden Zentren durch gehinderte Rotation zu kurz wird. Dieser inkohärente Zerfallsprozeß kann anhand folgenden Modells verstanden werden:

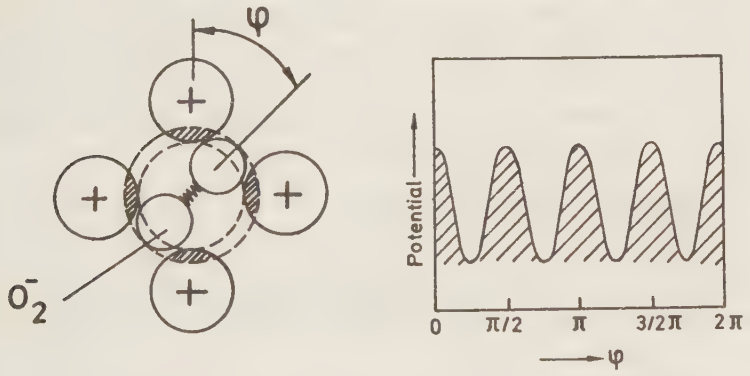

Fig. 27 a: Einbaulage des gehinderten Rotators
27 b: Potential in Abhängigkeit von φ

Um von einer Gleichgewichtslage in eine benachbarte äquivalente Einbaulage zu gelangen (siehe Fig. 27), muß das Molekül eine Potentialschwelle ΔE überwinden. Dieser thermisch aktivierte Prozeß ist gemäß dem Exponentialgesetz $\exp(-\Delta E/kT)$ bei höherer Temperatur wahrscheinlicher. Aus ESR-Messungen ist jedenfalls bekannt (siehe Kap. 2.1), daß bei etwa 30 K das ESR-Signal der Zentren fast verschwindet. Dies wird dort /14/ mit Umorientierung der Zentren gedeutet. Wird die Verweilzeit der Zentren in einer gegebenen Gleichgewichtslage kleiner als 15 ps, dann verlieren sie durch die Umorientierung die Phaseninformation zum Gesamtzustand. Daß solch eine Um-

orientierung auch noch zusätzlich an den Sattelpunkten (bei den Winkeln $\varphi = 0, \pi/2, \pi$ und $(3/2)\pi$ möglicherweise besonders stark an die Vibronen koppelt, ist in der Skizze 27 a angedeutet. An diesen Stellen besteht eine hohe Wahrscheinlichkeit für einen zusätzlichen Zerfallskanal der Vibronen. Dadurch kann die Relaxationszeit τ_2 ebenfalls temperaturabhängig werden.

Die noch zusätzliche Abhängigkeit der SF von der Zentrenkonzentration, wie sie in Fig. 12 anhand experimenteller Daten ersichtlich ist, kann folgendermaßen verstanden werden:

Im Gesamtspinbild betrachtet startet die SF erst dann, wenn die Dichte ϱ_2 der kooperierenden Moleküle im Zustand E_2 so groß ist, daß sich innerhalb λ^3 mindestens ein Molekül aufhält. Bei $\lambda = 630$ nm muß dann $\varrho_2 > 2{,}5 \times 10^{13}/cm^3$ sein. Weiterhin beharrt die Superfluoreszenz im Startvorgang bei $\dot{\varrho}_2 = 0$. Daraus läßt sich anhand der Beziehung (21) folgender Zusammenhang zwischen ϱ_1 und τ_2 ableiten:

$$\frac{\varrho_2 \lambda^3}{\varrho_2 \lambda^3 + 1} = \varrho_2 \lambda^3 W_{12} \cdot \tau_2 \qquad (22)$$

Mit einer Dichte $\varrho_2 > 2{,}5 \times 10^{13}/cm^3$, als unterer Schranke für das Aufkommen der SF, ergibt sich:

$$\varrho_1 \cdot \lambda^3 \cdot W_{12} \cdot \tau_2 > 1 \qquad (23)$$

Diese Beziehung drückt aus, daß bei gegebener W_{12} das Produkt von $\varrho_1 \cdot \tau_2$ einen Grenzwert überschreiten muß. Unter Berücksichtigung, daß die Zentrenkonzentration eine obere Grenze für ϱ_1 liefert, die in den meisten Fällen durch die Anregung auch erreicht wird, kann dieser Zusammenhang gemäß Fig. 12 (Kap. 3.4.1) beobachtet werden. Bei Erniedrigung der Zentrenkonzentration und damit der Anregungsdichte fällt auch die kritische Temperatur. Je geringer die Anregungsdichte, desto größer muß τ_2 sein. τ_2 läßt sich jedoch nicht beliebig erhöhen. Das zeigt sich auch darin, daß erst ab einer Zentrenkonzentration von etwa $8 \times 10^{16}/cm^3$ SF beobachtet wird. Mit der kritischen Konzentration und T_k besteht evtl. die Möglichkeit, $\tau_2(T)$ zu bestimmen.

5.0 Zeitaufgelöste Experimente zur Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl

Nach den bisherigen Ausführungen handelt es sich bei der beobachteten kohärenten Strahlung zweifelsfrei um Superfluoreszenz. Die Wechselwirkungsprozesse der Zentren mit dem Wirtsgitter während der Relaxation spielen eine wichtige Rolle beim Zustandekommen der Superfluoreszenzpulse. Für eine zusammenfassende Interpretation fehlen noch gezielt ausgerichtete experimentelle Ergebnisse.

In den folgenden Kapiteln werden Experimente zur Verzögerungszeitstatistik, zur Polarisation, zur rückgekoppelten (getriggerten) und zur Zwei-Farben-Superfluoreszenz vorgestellt. Bei allen Messungen befand sich die Probe bei der Temperatur des flüssigen Heliums.

5.1 Experimente zur Statistik der Superfluoreszenz

Die charakteristischen Größen eines SF-Pulses sind die Verzögerungszeit t_d, die Intensität I und die Pulsbreite t_p. Die Konzentration der bei einem Puls beteiligten Zentren bestimmt nach dem Modell von Dicke im wesentlichen die Intensität und den Zeitmaßstab:

$$\begin{aligned} I &\sim N^2 \\ t_p &\sim 1/N \\ t_d &\sim 1/N \ln N \end{aligned} \qquad (23)$$

Die Statistik der SF bezieht sich lediglich auf die Startphase. Nach Anregung der Zentren lösen die ersten spontanen Photonen die Emissionslawine aus. Dieser Auslöseprozeß liefert ein makroskopisches Indiz für Quantenfluktuationen. Der danach folgende Prozeß erfolgt deterministisch mit konstantem Gesamtspin j wie in Kap. 4.2 beschrieben.

Mit folgendem experimentellen Aufbau (Fig. 28) ist es möglich, diese Größen für einzelne SF-Pulse zu bestimmen. Vom Anregungspuls des Lasers (266 nm, 30 ps) werden über einen Strahlteiler wenige % als Referenz auf die Diode abgelenkt. Mit diesem Referenzpuls werden die von Schuß zu Schuß auftretenden Laserschwankungen registriert. Als Maß für den Zeitnullpunkt dient der transmittierte Anregungspuls, der wegen des längeren Weges, etwa 1,7 ns, später registriert wird. Der SF-Puls in Richtung des transmittierten Anregungspulses trifft dann nach einer Verzögerungszeit t_d auf die Diode. Der SF-Puls in Gegenrichtung, der die gleiche Intensität und Verzögerungszeit hat, bleibt bei diesem Experiment unberücksichtigt.

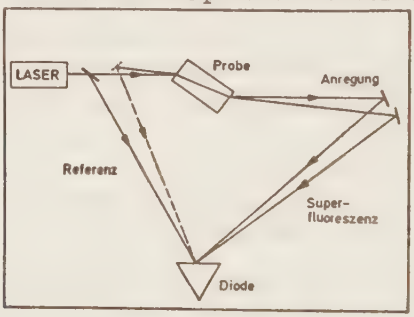

Fig. 28 a:
Experimenteller Aufbau
Der Laseranregungspuls (266 nm, 30 ps) wird über einen Strahlteiler als Referenz abgezweigt. Der transmittierte Anregungspuls dient als Zeitnullpunkt (Anregung), und die Superfluoreszenz wird nur in Vorwärtsrichtung nachgewiesen.

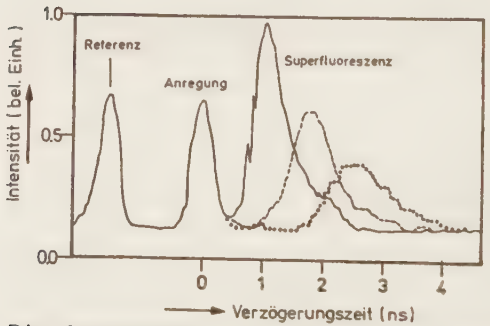

Fig. 28 b:
Drei typische Meßergebnisse bei gleicher Anregungsintensität des Lasers (Referenz). Die verschiedenen Verzögerungszeiten t_d der SF-Pulse werden vom Zeitnullpunkt (Anregung) bestimmt.

Die drei SF-Pulse in Fig. 28 b stammen von Laserpulsen gleicher Anregungsdichte. Die Spitzenintensitäten der dazugehörigen Referenzpulse haben die gleiche Höhe. Im Dicke-Bild gesehen hätten die SF-Pulse bei identischen Anregungen gleiche Intensitäten bei gleichen Verzögerungszeiten. Abweichend davon beobachten wir statistische Schwankungen dieser Größen bei gleichen Anregungsbedingungen.

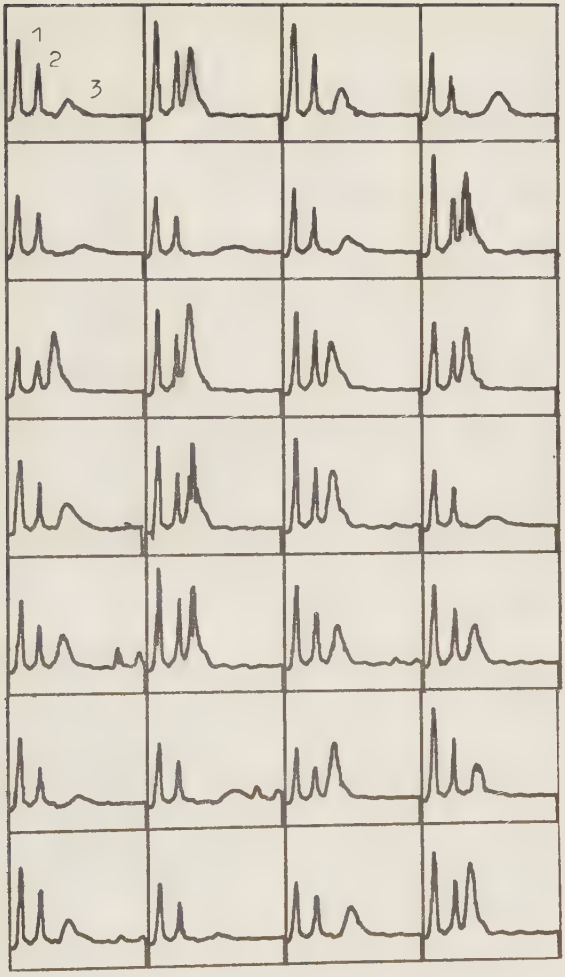

Fig. 29: 24 hintereinander digitalisierte Schüsse mit SF-Pulsen.
Der dazugehörige experimentelle Aufbau ist in Fig. 28a bereits beschrieben.
Zu jedem Referenzpuls (1) gehört ein Anregungspuls (2) und ein SF-Puls (3).
Die Anregung erfolgte im Einzelpulsbetrieb des Nd:YAG-Lasers bei 266 nm und 30 ps Pulsbreite.
Die Bildlänge entspricht 10 ns.

Für eine Auswertung der statistisch schwankenden Größen ist eine große Anzahl von Messungen erforderlich. In Fig. 29 sind 24 hintereinander digitalisierte Laserschüsse dargestellt. Zu jedem SF-Puls gehört ein Anregungspuls (Zeitnullpunkt) und ein Referenzpuls (Intensität des Lasers). Die Anregung erfolgte im Einzelpulsbetrieb des Lasers.

Eine Meßserie bestehend aus etwa 1.000 Einzelschüssen wurde folgendermaßen ausgewertet. Es wurden nur Schüsse mit etwa gleicher Anregungsenergie von $(90 \pm 5)\,\mu J$ berücksichtigt. Auswahlkriterium war die Intensität des ersten Pulses (Referenz). Die Energie wurde mit einem Energiemeter (Laser Precesion Corporation), Typ R_J-7000 einmal zur Eichung direkt hinter dem Strahlteiler in Fig. 28 a gemessen. Die absolute Anregungsdichte in der Probe kann experimentell nicht bestimmt werden. Sie ist noch zusätzlich von der Fokussierung und der Kristallgüte abhängig. Diese Bedingungen wurden jedoch während einer Meßserie nicht verändert.

Aus diesen aussortierten Ergebnissen wurden anschließend die Intensitäten der SF-Pulse als Ordinate und die dazugehörigen Verzögerungszeiten als Abszisse in Fig. 30 a aufgetragen. Bei kurzen Verzögerungszeiten bis zu etwa 1 ns sind die Spitzenintensitäten der SF-Pulse am höchsten. Bei doppelt so langen Verzögerungszeiten beobachtet man eine um etwa 90 % niedrigere Spitzenintensität, die bei noch größeren Verzögerungszeiten weiter fällt.

Das darunter angeordnete Histogramm der vorkommenden Verzögerungszeiten liefert folgende Informationen auf einen Blick. Die häufigsten Pulse haben Verzögerungszeiten um 1 ns herum. Die beobachteten Verzögerungszeiten liegen im Bereich zwischen 500 ps und etwa 5 ns. SF-Pulse mit Verzögerungszeiten größer als 5 ns haben auch entsprechend große Linienbreiten und sind auch nicht mehr so intensiv. Die längsten beobachteten Verzögerungszeiten liegen bei etwa 10 ns mit Breiten von etwa 6 ns. Die Einhüllende des Histogramms ist stark asymmetrisch. In Richtung kürzere Verzögerungszeit fällt sie steiler auf 500 ps ab.

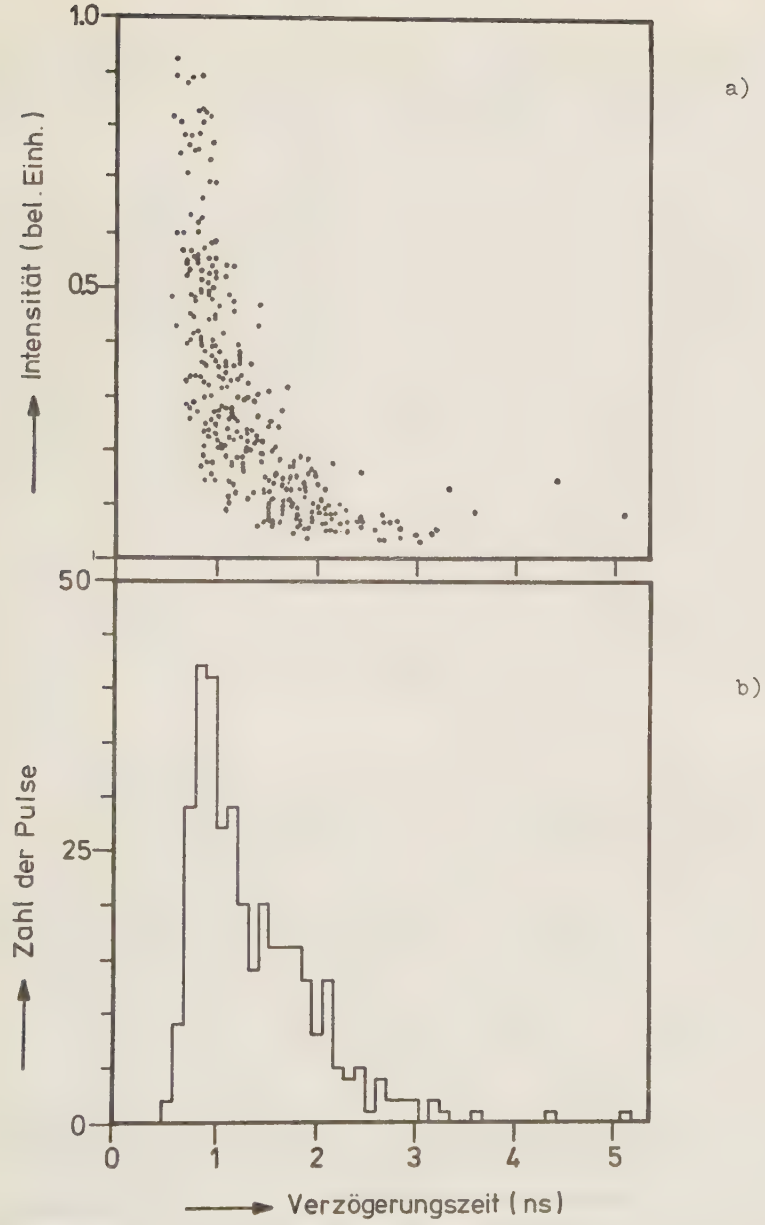

Fig. 30 a:
Statistische Schwankungen der Spitzenintensitäten und Verzögerungszeiten von SF-Pulsen. Die Messung erfolgte gemäß Aufbau Fig. 28a. Es wurden nur solche SF-Pulse ausgewertet, die von Anregungspulsen (266 nm, 30 ps) gleicher Anregungsenergie $(90 \pm 5)\,\mu J$ gestartet wurden.

Fig. 30 b:
Dazugehöriges Histogramm der Verzögerungszeiten

Das Histogramm in Fig. 30 b ändert sich nur unwesentlich, wenn man die Anregungsenergie (90 ± 5)μJ in feinere Schritte

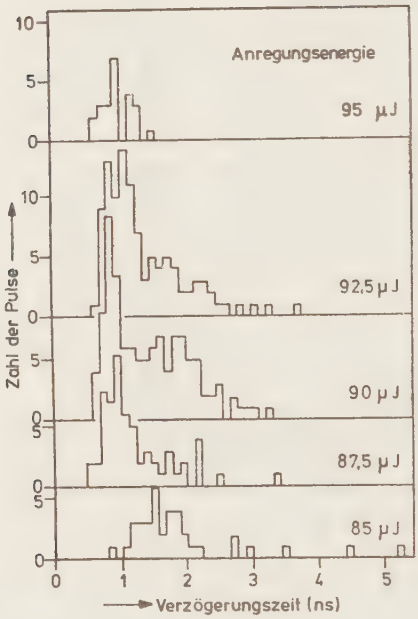

Fig. 31:
Unterteilung des Histogramms von Fig. 30 b in feinere Stufen der Anregungsenergie. Bei den Anregungsenergien 92,5 μJ, 90 μJ und 87,5 μJ ändern sich die Histogramme unwesentlich. Bei den Grenzwerten 85 μJ und 95 μJ sieht man geringe Tendenzen zu längeren und kürzeren Verzögerungszeiten. Hier ist aber auch die Zahl der Stichproben im Vergleich zu den mittleren Bildern geringer.

von 2,5 μJ unterteilt. Dies sieht man auch deutlich bei den mittleren Histogrammen (Fig. 31) mit Anregungsenergien von 92,5 μJ, 90 μJ und 87,5 μJ, wo auch die Anzahl der Schüsse etwa gleich ist. Bei der unteren Grenze der Anregungsenergie sieht man eine Tendenz zu längeren Verzögerungszeiten und bei der oberen Grenze (95 μJ) das umgekehrte Verhalten. Jedoch ist hierbei zu beachten, daß die Anzahl der Stichproben im Vergleich zu den mittleren Bildern geringer ist.

Wie in Kap. 3.6 bereits erwähnt, ändern die Superfluoreszenzpulse in Abhängigkeit von der Anregungsdichte ihre Wellenlänge. Bei hohen Anregungsdichten sind hauptsächlich gelbe SF-Pulse, bei niedrigeren Anregungsdichten rote und gelbe meist gleichzeitig und bei geringen Anregungsdichten nur rote SF-Pulse zu beobachten. Dabei wurde die Distanz der Anregungslinse (Brennweite 0,5 m) zur Probe verändert. Eine ausführlichere Diskussion zur "Zwei-Farben-SF" kann Kap. 5.4 entnommen werden.

Es interessiert vielmehr die Frage, ob sich die Statistik der SF-Pulse durch Verschieben der Anregungslinse (gleichzeitige Änderung der Anregungsgeometrie und Anregungsdichte) ändert.

Das Ergebnis dieses Experiments kann Fig. 32 entnommen werden. Im oberen Bild sind die Spitzenintensitäten und die dazugehörigen Verzögerungszeiten aufgetragen. Die Striche (a) stammen von SF-Pulsen (hauptsächlich gelb) bei höheren Anregungsenergien und kleinerem Durchmesser des Inversionskanals. Die Punkte (b) sind von SF-Pulsen bei niedrigeren Anregungsdichten und größerem Durchmesser des "Bleistifts". Die dazugehörenden Histogramme sind ebenfalls nach Anregungsdichten getrennt dargestellt (Fig. 32 unten). Bei Verzögerungszeiten größer als 2 ns sind die SF-Pulse von geringen Anregungsdichten (b) dominierend. Zu kürzeren Verzögerungszeiten hin sind die Unterschiede beider Histogramme nicht so deutlich. Die Maximalwerte der vorkommenden Verzögerungszeiten unterscheiden sich nur um 120 ps. Beide Histogramme haben jedoch etwa gleiche kürzeste Verzögerungszeiten um 500 ps.

Nach dem klassischen Dicke-Bild (Variation der Anregungsdichte siehe Kap. 4.2) wäre zu erwarten, daß eine Erhöhung der Anregungsdichte eine Änderung der SF lediglich im Zeitmaßstab nach sich ziehen würde. Dies zeigt sich jedoch nicht im Experiment. Die Kurvenformen unterscheiden sich zu sehr, daß sich durch Änderung der Skalierung des Zeitmaßstabes z.B. vom Histogramm a zur Deckung gebracht werden können. Legt man jedoch den Nullpunkt der Verzögerungszeiten auf etwa 400 ps, dann ist dies möglich. Daraus folgt: Die Organisation zur SF beginnt erst ab etwa 400 ps. Die eigentliche Relaxationszeit im vereinfachten Niveauschema gemäß Fig. 22 beträgt $\tau_1 < 150$ ps (siehe Kap. 3.3). Die Zeitdifferenz bis zum eigentlichen Start der SF-Pulse wird vom System dazu benötigt, um von einer lokalen Temperaturerhöhung während des Relaxationsprozesses von etwa 85 K (siehe Kap. 4.3.1) wieder die für die SF nötige kritische Temperatur $T_k < 28$ K zu unterschreiten. Daraus folgt, diese Zeit τ_4 muß größer als 250 ps sein.

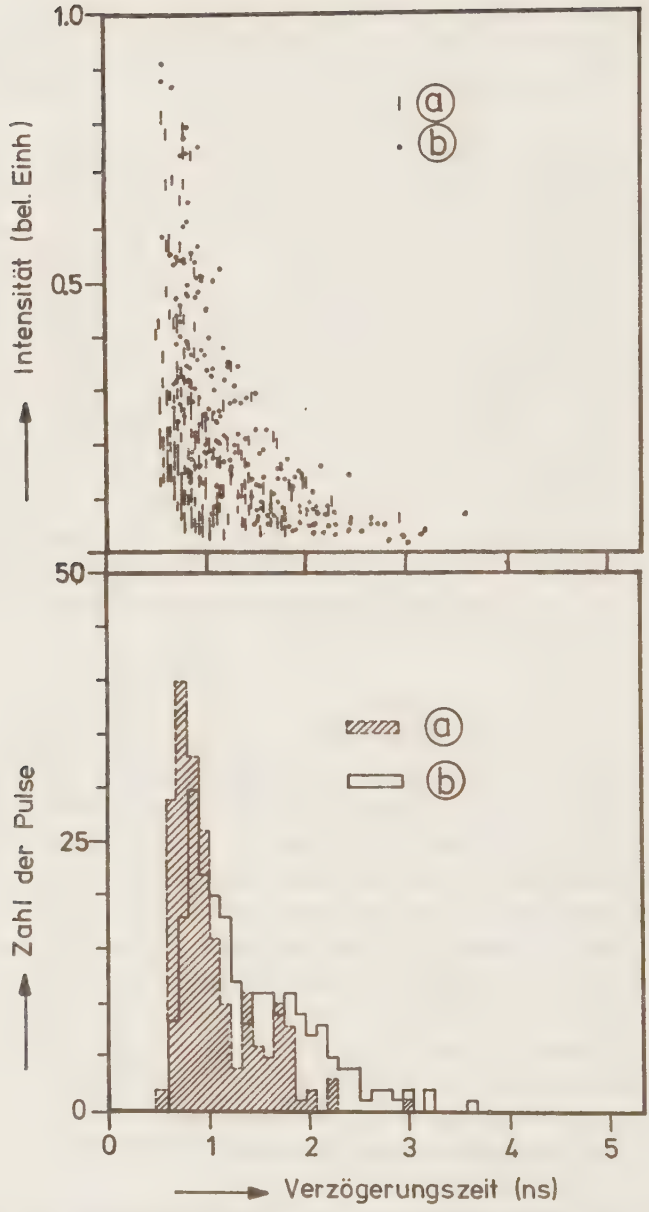

Fig. 23: Intensitäten und Verzögerungszeitstatistik
a) hohe Anregungsdichte: SF-Pulse hauptsächlich gelb,
b) niedrigere Anregungsdichte: SF-Pulse haupts. rot.

Die statistischen Schwankungen der Pulse bei konstanten Anregungsdichten sind ein Indiz für Quantenfluktuationen. Die Statistik der Verzögerungszeiten von SF-Pulsen im Festkörper ist bis jetzt noch nicht beobachtet worden. Vrehen und Weduwe /113/ haben die Statistik der SF-Pulse von Cs-Dampf bei Übergängen im Infraroten untersucht. Die Theorie dazu ist von Haake und Mitarbeitern /161, 164, 169 und 170/ ausgearbeitet worden. Die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse unterscheiden sich von dem o.g. Experiment am Cs-Dampf:

Die SF-Pulse von den Zentren haben innerhalb der Zeitauflösung in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung gleiche Intensitäten und Verzögerungszeiten im Gegensatz zu den Cs-Experimenten.

Die Fluktuation der Verzögerungszeiten bei kleinen Fresnelzahlen $F = S/\lambda \times L$ (S: Fläche des Bleistifts, λ : Wellenlänge, L: Kristallänge), d.h. bei höherer Anregungsdichte gemäß Fig. 32, ist geringer im Gegensatz zu Beobachtungen am Cs-Dampf von Vrehen und Weduwe /113/.

Eine mögliche Erklärung der unterschiedlichen Ergebnisse kann die zusätzliche lokale Aufheizung während des Relaxationsprozesses bei den O_2^--Zentren im KCl sein.

5.2 Experimente zur Polarisation der Superfluoreszenz

Die Kohärenzzeit der Superfluoreszenzpulse, mit dem Michelson-Interferometer (siehe Kap. 3.5) gemessen, ist größer als 100 ps. Innerhalb dieser Zeit ändert sich demnach die Polarisation der SF nicht. Es hat sich weiterhin gezeigt, daß die Superfluoreszenzpulse in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung in einer dem Michelson-Interferometer analogen Anordnung ebenfalls ein Ringsystem bilden. Daher müssen die entgegengesetzt abstrahlenden SF-Pulse aus dem gleichen Gebiet im Kristall stammen.

Mit dem experimentellen Aufbau (Fig. 33 b) sind die folgend beschriebenen polarisationsabhängigen Messungen gemacht worden. Die Anregung der Zentren erfolgt mit dem Pulszug des Nd:YAG-Lasers (266 nm, etwa zehn 30 ps Pulse im Abstand von 7,5 ns). Die Superfluoreszenzpulse rückwärts und vorwärts durchlaufen verschieden lange Wege, bevor sie auf die Photodiode auftreffen. Die Polarisationsabfrage erfolgt mit zwei Polarisationsfolien P1 und P2. Die Messungen werden digitalisiert und gespeichert, wie in Kap. 3.1 näher beschrieben.

Für das weitere Verständnis ist es nötig, mehr über die atomistische Struktur der O_2^--Zentren im KCl zu wissen. Die Kernverbindungsachsen liegen in ⟨110⟩-Richtung. Das Übergangsdipolmoment der spontanen Emission liegt mit großer Wahrscheinlichkeit gemäß M. Ikezawa und J. Rolfe /54/ in Richtung der Molekülverbindungsachse. Durch die Einbaulage der Zentren resultiert eine 6-fache Orientierungsentartung. Bei der Superfluoreszenz strahlen die Zentren kooperativ ab. Die einzelnen Zentren koppeln zu einem Gesamtzustand mit einer Gesamtpolarisation.

Wie in Fig. 33 a angedeutet, bestimmt die Ausbreitungsrichtung des Lasers im Labor die z-Achse. Der Kristall wird mit seinen Spaltflächen [100] genau senkrecht zur Anregungsrichtung justiert. Weiterhin sollen die x- und y-Achsen des Kristalls mit den Abfragerichtungen der Polarisation entlang der SF-Wege übereinstimmen.

Nach einer exakten Orientierung des Kristalls folgen Eichmessungen. Beide Polarisatoren werden gleichzeitig in P_x- und dann in P_y-Richtung gebracht. Dann werden die Intensitäten der SF-Pulse entlang der verschiedenen Wege registriert. Dabei können innerhalb des Pulszuges durch wiederholte Anregung die SF-Pulse mehrmals entstehen. Die Messungen haben gezeigt, daß die Polarisation der SF-Pulse in entgegengesetzter Richtung gleich ist.

Um Aussagen über die Polarisationsrichtung zu machen, müssen die Polarisatoren für Vorwärts- und Rückwärtsrichtung gekreuzt werden. Bei einer beliebig angenommenen Orientierung des Polarisationsvektors in der xy-Ebene kann die Richtung des Polarisationsvektors nach gleichzeitiger Bestimmung der Komponenten P_x und P_y über die Beziehung $\varphi = \arctan(P_y/P_x)$ ermittelt werden. Eine wichtige Voraussetzung muß jedoch erfüllt sein. Die Polarisation der SF-Pulse entlang der getrennten Wege vom Kristall zur Diode dürfen nicht unterschiedlich beeinflußt werden (z.B. durch Spiegel).

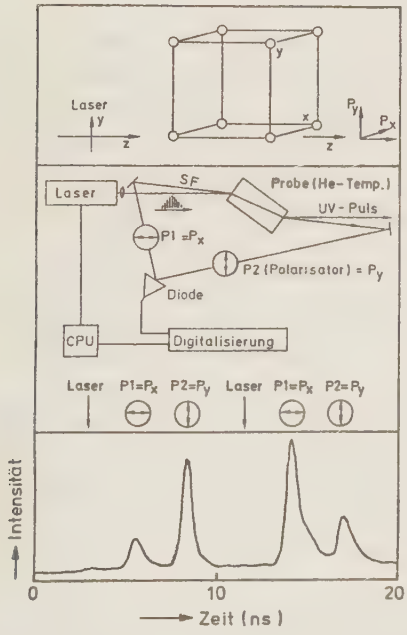

Fig. 33 a:
Kristallorientierung relativ zur z-Achse des Anregungsstrahls des Lasers und zu den Richtungen der Polarisatoren. Bei der Messung (c) befanden sich die Richtungen der Polarisatoren und die Strahlrichtung des Lasers parallel zu den dazugehörigen Kristallachsen.

Fig. 33 b:
Experimenteller Aufbau.
Die Polarisationsrichtungen der Rückwärts-SF P1 und der Vorwärts-SF P2 sind nach Anregung über verschieden lange Wege zeitlich getrennt aufgenommen worden.

Fig. 33 c:
Jeweils ein SF-Pulspaar wurde von einem Laserpuls aus dem Pulszug angeregt. Der erste Puls ist in y-Richtung polarisiert und der 7,5 ns später angeregte SF-Puls in x-Richtung.

Es sollen P1 die x-Komponente und P2 die y-Komponente des Polarisationsvektors messen. Ohne spezielle Orientierung der Probe beobachtet man tatsächlich eine statistisch schwankende Polarisationsrichtung. Wird allerdings der Kristall extrem sorgfältig justiert, dann beobachtet man ein davon abweichendes Ergebnis (siehe Fig. 33 c). Dabei muß sich der Anregungsstrahl (z-Achse) des Lasers genau senkrecht zur Spaltfläche des Kristalls befinden. Weiterhin müssen die Polarisatoren parallel zu den x- und y-Achsen des Kristalls orientiert

sein. (In Fig. 38 a ist der Kristall schräg eingezeichnet worden, um dem Leser die unterschiedlichen Strahlengänge von Anregung und SF deutlich zu machen.) Ein typisches Meßergebnis zeigt Fig. 33 c unten. Innerhalb des Pulszuges des Lasers sind zwei SF-Pulse von zwei benachbarten (7,5 ns) Anregungspulsen ausgelöst worden. Die beiden SF-Pulse durchlaufen über die Polarisatoren verschieden lange Wege, so daß letztlich im Zeitmaßstab jeder SF-Puls in die Polarisationsrichtungen P_x und P_y aufspaltet. Der SF-Puls entlang des Weges 1 wird vom Polarisator in x-Richtung fast völlig ausgelöscht, während der SF-Strahl in Vorwärtsrichtung von dem Polarisator in y-Richtung fast ungeschwächt bleibt. Bemerkenswert ist, daß das Intensitätsverhältnis der darauffolgenden SF nach einer zusätzlichen Laseranregung des nächsten Pulses innerhalb des Pulszuges sich umkehrt. Nach 7,5 ns wird eine weitere SF abgerufen mit zum ersten Puls senkrechter Polarisation. Das heißt, die Zentren mit geeigneter Orientierung, die zum ersten SF-Puls mit einer überwiegenden Polarisation in y-Richtung beigetragen haben, fehlen nach Ablauf der SF im angeregten Zustand, während sich die Zentren anderer Orientierung innerhalb der kurzen Zeit im Vergleich zur spontanen Lebensdauer fast alle noch im angeregten Zustand befinden. Dieses ungleiche Verhältnis kann auch nicht durch eine erneute Anregung nach 7,5 ns aufgehoben werden. Dieses zeigt das Meßergebnis, denn in der Startphase des darauffolgenden SF-Pulses gewinnt eine um 90° verschobene Polarisation (P_x). Das heißt, das Polarisationsgedächtnis ist größer als 7,5 ns.

Das zuletzt beschriebene Ergebnis steht in Widerspruch zur Annahme, daß die Dipolmomente in ⟨110⟩-Richtung liegen. Denn von den sechs verschiedenen möglichen Dipolorientierungen bilden jeweils vier mit den Richtungen ⟨100⟩ einen Winkel von 45° und machen eine Auslöschung unmöglich.

Nimmt man jedoch an, daß die Dipolmomente in ⟨100⟩-Richtung zeigen, dann lassen sich die Polarisationsmessungen erklären. Startet z.B. die y-Richtung die SF zum ersten Mal, dann kann nach 7,5 ns die x-Richtung wegen der überwiegenden Zahl ange-

regter Zentren gewinnen, und die SF erhält eine Gesamtpolarisation in x-Richtung.

Die statistisch schwankende Polarisationsrichtung wurde bei schlecht orientierten Kristallen beobachtet. Die einzelnen Polarisationsrichtungen sind auch dann schwer zu entkoppeln, wenn Kristalle innere Verspannungen, hervorgerufen durch Inhomogenitäten, aufweisen.

5.3 Experimente zur getriggerten Superfluoreszenz

Erreicht man unmittelbar nach einer hochenergetischen Anregung der O_2^--Zentren im KCl eine genügend hohe Anregungsdichte $\mathcal{P}_1$ im angeregten Zustand und befindet sich die Probe unterhalb der kritischen Temperatur für die Superfluoreszenz, dann sind die äußeren Bedingungen für das Aufkommen eines SF-Pulses erfüllt. Ohne Einfluß von außen startet dann die Superfluoreszenz über die ersten spontanen Photonen. Startet ein SF-Puls, dann fällt das Signal der spontanen Emission der Zentren um etwa 10 %. Das heißt, etwa 10 % der angeregten Zentren sind beim Zustandekommen des SF-Pulses beteiligt.

Nach erfolgter Anregung können die SF-Pulse auch durch äußeren Eingriff gestartet werden. Die Triggerung der SF erfolgt durch Einstrahlen von Photonen in den Inversionszylinder direkt nach der Anregung. Die dazu benötigten Photonen müssen natürlich exakt in Resonanz mit dem Übergang sein.

Die Triggerung der SF-Pulse mit externen Lichtquellen ist schwierig. Es liegt jedoch nahe, z.B. den vorwärts gerichteten SF-Puls (siehe Fig. 34 a) über einen Spiegel in den "Bleistift" rückzukoppeln und somit die Superfluoreszenz von neuem zu starten. Die selbstgestartete SF hat Pulse mit etwa gleicher Intensität in beiden abgestrahlten Richtungen. Mit dem experimentellen Aufbau in Fig. 34 a soll zunächst das unterschiedliche Verhalten von selbstgetriggerter SF und getriggerter SF entlang der entgegengesetzten Wege untersucht werden.

Die Auskopplung der SF-Pulse entlang der beiden Wege erfolgt einmal mit einem Spiegel (Weg 1) und zum anderen mit einer Glasplatte (Weg 2). Die dadurch entstehenden Intensitätsunterschiede sind durch Graufilter entlang des Weges 1 so in etwa ausgeglichen worden (siehe Intensitäten der ersten Pulse in Fig. 34 b und c). Zur Anregung dient der Nd:YAG-Laser (266 nm). Der transmittierte Anregungspuls bleibt bei diesem Experiment unberücksichtigt. Die Zeitdifferenz der beiden entgegengesetzten getriggerten SF-Pulse unterscheidet sich nicht von der Laufzeitdifferenz der beiden Pulse entlang der unterschiedlich langen Wege 1 und 2 innerhalb der Zeitauflösung von $\pm$ 70 ps. Beobachtet man jedoch die relativen Intensitäten der SF-Pulse in beiden Richtungen, dann unterscheiden sich die Ergebnisse entlang des Weges 1 und des Weges 2. In Fig. 34 b sind die SF-Pulse entlang des Weges 1 im Zeitmaßstab dargestellt. Der erste selbstgestartete

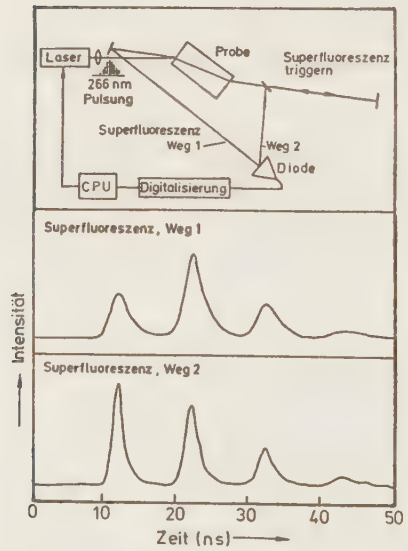

Fig. 34: Triggerung der SF-Pulse

a)
Experimenteller Aufbau
Die Anregung erfolgt mit dem Nd:YAG-Laser (Pulszug). Der transmittierte SF-Puls wird rückgekoppelt. Der Intensitätsunterschied der SF-Pulse entlang des Weges 1 (Spiegel) und des Weges 2 (Glasplatte) ist durch Graufilter in Weg 1 etwa ausgeglichen worden (siehe jeweils die ersten Pulse in b) und c)).

b)
Intensitäten der SF-Pulse entlang des Weges 1. Nach dem zuerst selbstgestarteten SF-Puls folgt der intensivere erste getriggerte SF-Puls. Danach folgen die immer schwächer werdenden getriggerten Pulse.

c)
Intensitäten der SF-Pulse entlang des Weges 2. Nach dem ersten selbstgestarteten SF-Puls folgen die getriggerten SF-Pulse mit fallender Intensität.

SF-Puls hat eine geringere Intensität als der danach folgende durch Rückkopplung der ersten SF getriggerte Puls. Die danach folgenden getriggerten SF-Pulse werden immer schwächer. Im Gegensatz dazu haben die Pulse entlang des Weges 2 (siehe Fig. 34 c) ein anderes Intensitätsverhalten. Der erste selbst

angeschwungene SF-Puls ist der intensivste Puls, und danach folgen die jeweils schwächeren getriggerten SF-Pulse. Die zuerst angeschwungenen SF-Pulse bei beiden Messungen entstanden erst am Ende des Pulszuges des Lasers, so daß während des Triggervorgangs eine weitere Anregung der Zentren keine beeinflussende Wirkung haben konnte.

Das unterschiedliche Intensitätsverhalten der getriggerten SF-Pulse entlang der entgegengesetzten Wege läßt sich innerhalb des in dieser Arbeit betrachteten theoretischen Modells nicht erklären. Durch die Triggerung der SF-Pulse am Ende des "Bleistifts" entsteht der Puls im Randbereich des Inversionszylinders und wird sehr wahrscheinlich danach im Fall des Weges 1 innerhalb des Kristalls noch zusätzlich verstärkt im Gegensatz zum entgegengesetzt ausgelösten Puls.

Weiterhin hat sich gezeigt, daß die SF-Pulse ohne weitere zusätzliche Anregung von Zentren durch den Laser getriggert worden sind. Dieses kann mit dem im folgenden beschriebenen experimentellen Aufbau genauer untersucht werden (siehe Fig. 35a). Die Anregung erfolgt mit dem Pulszug des Nd:YAG-Lasers (266 nm). Die transmittierten Laserpulse und die SF-Pulse in Rückwärtsrichtung werden mit der Photodiode registriert. Die transmittierten Anregungspulse treffen etwa 3,5 ns vor dem gemeinsamen Zeitnullpunkt auf die Diode, um auch bei Pulsen kurzer Verzögerungszeiten den Pulszug des Lasers von den SF-Pulsen zu trennen. Die transmittierten SF-Pulse werden über einen Spiegel in den Anregungskanal zurückgespiegelt. Die Messungen (Fig. 35 b) und (Fig. 35 c) sind mit einem Spiegelabstand von 1,1 m gemacht worden. Die Entfernung entspricht im Zeitmaßstab etwa einem Pulsabstand des Lasers von 7,5 ns. Bei Messung (b) startet erst der letzte Laserpuls die Superfluoreszenz. Dieser schwache SF-Puls startet nach Rückkopplung, ohne daß eine neue Anregung stattfindet, einen neuen SF-Puls und dieser wieder einen weiteren. In Messung (c) startet der erste SF-Puls schon zu einem früheren Zeitpunkt bezogen auf den Pulszug. Aber auch hier kann ein zusätzlicher SF-Puls getriggert werden, ohne daß eine weitere Anregung erfolgt. Für die Messung

(d) ist der Spiegelabstand L auf 0,4 m verkleinert worden. Das Ergebnis zeigt, daß nach dem ersten SF-Puls vier weitere getriggerte SF-Pulse im Abstand von etwa 2,7 ns erfolgen. Hierbei sind zwischenzeitlich auch keine Zentren zusätzlich angeregt worden.

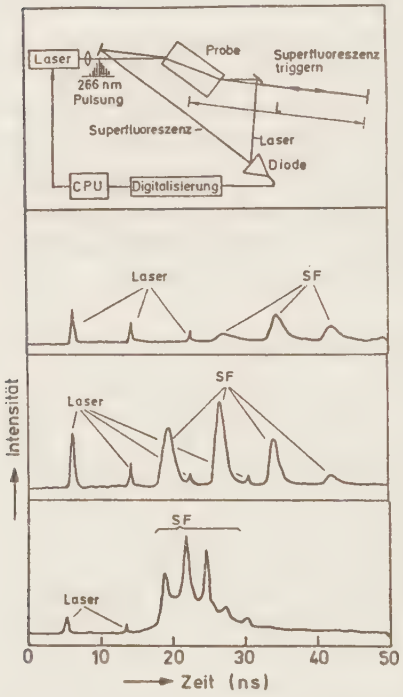

Fig. 35 a:
Die Anregung erfolgt mit dem Pulszug des Nd:YAG-Lasers. Die transmittierten Anregungspulse und die SF-Pulse in entgegengesetzter Richtung werden über eine Photodiode aufgrund der Laufzeitunterschiede von $\Delta t \sim 3{,}5$ ns zeitlich getrennt registriert.

b)
(L = 1,1 m) Nach dem letzten Laserpuls aus dem Pulszug startet der erste SF-Puls selbsttätig. Dieser Puls triggert die weiteren SF-Pulse, ohne daß weitere Zentren angeregt wurden.

c)
(L = 1,1 m) Noch innerhalb des Pulszuges des Anregungslasers startet der erste SF-Puls. Die folgenden SF-Pulse sind getriggert worden.

d)
(L = 0,4 m) Bei kürzeren Abständen des Rückkoppelspiegels L können ebenfalls SF-Pulse getriggert werden, auch wenn keine weiteren Zentren in den angeregten Zustand zwischenzeitlich gelangen.

Unter Hinzunahme weiterer Beobachtungen kann festgehalten werden, daß sich SF-Pulse von etwa 1 ns bis zu etwa 20 ns nach dem letzten Anregungspuls des Pulszuges triggern lassen. Weiterhin wurde nachgewiesen, daß die getriggerten SF-Pulse die Polarisation des ersten SF-Pulses erwartungsgemäß reproduzieren.

Zur Deutung dieser Beobachtungen wird folgendes Modell vorgeschlagen: Während der Relaxation im angeregten Zustand entsteht durch die hohe Energieabgabe ans Gitter eine lokale Erwärmung, die die Superfluoreszenz erst nach 400 ps ermöglicht (siehe Kap. 4.3.1). Während der Relaxation im Grundzustand wird in etwa der gleiche Energiebetrag ans Gitter abgegeben. Durch den

lawinenartig ablaufenden SF-Puls werden etwa 10 % der angeregten Zentren innerhalb sehr kurzer Zeit im Vergleich zur spontanen Lebensdauer in das dazugehörige Niveau des Grundzustands versetzt. Der folgende Relaxationsprozeß ist wie im angeregten Zustand mit einer lokalen Aufheizung verbunden. Die Umorientierung der O_2^--Zentren ist ein thermisch aktivierter Prozeß. Wie in Kap. 4.3.2 bereits beschrieben, bewirkt diese Umorientierung der Zentren einen zusätzlichen Zerfallskanal der Vibronen im Grundzustand. Wird dadurch die Relaxationszeit τ_2 im vereinfachten Niveauschema Fig. 22 kleiner als 50 ps, dann erlischt die Superfluoreszenz, und ein erneuter SF-Puls kann auch nicht extern getriggert werden, weil die Dichte ϱ_2 im unteren Niveau zu gering bleibt. Es ist wahrscheinlich, daß die Dichte der anfangs korrelierten Zentren ϱ (bedeutungsgleich mit der Kooperationszahl j) durch zunehmende lokale Aufheizung durch den Relaxationsprozeß im Grundzustand während des zeitlichen Ablaufs des SF-Pulses verkleinert wird. Anhand der experimentellen Ergebnisse hat sich jedoch gezeigt, daß sich schon nach etwa 1 ns ein neuer SF-Puls triggern läßt. Innerhalb dieser Zeit müssen die Zentren ihre thermische Energie ans Gitter abgegeben haben.

Aus polarisationsabhängigen Messungen (siehe Kap. 5.2) hat sich gezeigt, daß bei sehr sorgfältiger Justierung die Zentren ein Polarisationsgedächtnis größer als 7,5 ns haben. Dieses Ergebnis steht nicht in Widerspruch zu den Beobachtungen der getriggerten SF. Die getriggerten SF-Pulse haben die gleiche Polarisation wie der erste selbstgestartete SF-Puls. Die Intensität nimmt von Puls zu Puls ab (die Ausnahme entlang des Weges 1 in Fig. 34 b hat andere Ursachen). Die Dichte der Zustände dieser Polarisationsrichtung wird dabei abnehmen. Läßt man das System von außen unbeeinflußt, dann wird natürlich die Polarisationsrichtung in der Startphase am wahrscheinlichsten anschwingen, von der die größte Anregungsdichte vorhanden ist. Im völlig entkoppelten Fall (siehe Fig. 33 c) wird dann nach einer erneuten Anregung (7,5 ns) die um 90 Grad verschobene Polarisationsrichtung bevorzugt werden, weil die Dichte der Zentren mit anderer Polarisationsrichtung durch den vorhergehenden SF-Puls vermindert worden ist. Auch eine erneute Anregung kann dieses Ungleichgewicht nicht aufheben.

5.4 Experimente zur Zwei-Farben-Superfluoreszenz

Die spontane Emission der O_2^--Zentren erfolgt nach einer Anregung mit einem 30 ps Puls bei 266 nm vom relaxierten angeregten Zustand $^2\pi_u$ mit der Quantenzahl v' = 0 in vibronische Niveaus des Grundzustands $^2\pi_g$ mit Quantenzahlen v" = 4 bis 13. Unterhalb einer kritischen Temperatur T < 28 K und bei Zentrenkonzentrationen zwischen 8 x 10^{16} und 7 x $10^{17}/cm^3$ können die Übergänge (v' = 0 → v" = 10) bzw. (v' = 0 → v" = 11) Superfluoreszenz-Pulse der Wellenlänge 629,1 nm bzw. 592,8 nm abstrahlen.

Bei Anregungsenergien des Lasers in Höhe der Schwellenergie von 20 - 30 μJ ist die rote SF allein zu beobachten. Nach weiterer Erhöhung der Anregungsenergie treten beide SF-Pulse rot und gelb zusammen auf, und schließlich bei weiterer Steigerung der Anregungsenergie erscheint die gelbe SF dominierend.

Die Frage nach der Gleichzeitigkeit und nach dem Verhalten der relativen Intensitäten der "Zwei-Farben-SF" soll mit dem experimentellen Aufbau (siehe Fig. 36 a) untersucht werden. Die Anregung erfolgt mit einem 30 ps Puls mit einer Wellenlänge von 266 nm. Als Referenz (Puls 1) zur Überwachung von Intensitätsschwankungen des Lasers wird ein geringer Teil vom Anregungsstrahl ausgeblendet. Die roten und gelben SF-Pulse werden anschließend über ein Gitter getrennt. Die zeitliche Trennung der beiden Pulse wird durch Laufzeitdifferenzen hergestellt. Nach dem Referenzpuls (1) erscheint der transmittierte gelbe SF-Puls (2) und dann der transmittierte rote SF-Puls auf dem Detektor. Der transmittierte Anregungspuls bleibt bei diesem Experiment unberücksichtigt. In Fig. 36 b sind drei verschiedene Messungen unter gleichen Anregungsbedingungen dargestellt. Nach dem Referenzpuls (Puls 1) erscheint der gelbe SF-Puls (Puls 2) und der verzögerte rote SF-Puls (Puls 3). Es ist zu beobachten, daß das relative Intensitätsverhältnis beider SF-Pulse (Pulse 2 und 3) statistisch schwankt. Ist der gelbe Puls (2) z.B. sehr intensiv, dann folgt der über einen längeren Weg laufende rote Puls entsprechend schwächer und umgekehrt.

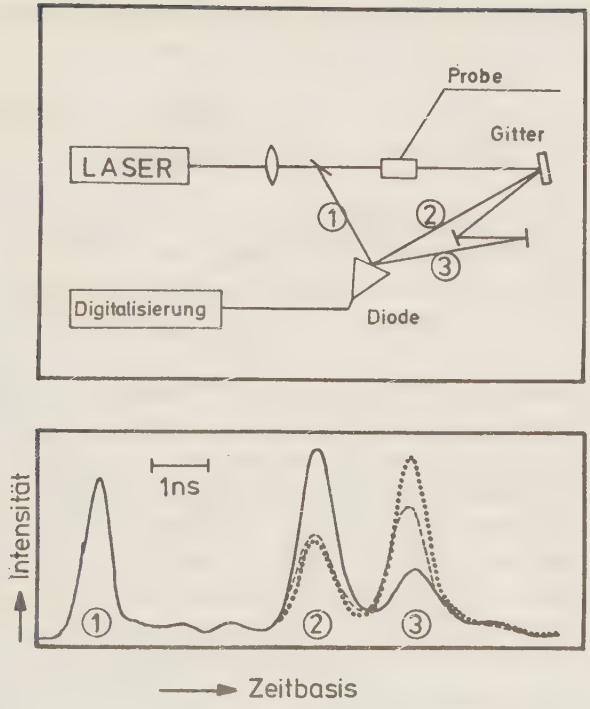

Fig. 36

Experiment zur Zwei-Farben-SF

a)
Experimenteller Aufbau
Die Anregung erfolgte mit dem Nd:YAG-Laser (266 nm, 30 ps). Der Referenzpuls (1) überwacht die Laserschwankungen. Der gelbe SF-Puls (2) wird über ein Gitter vom roten SF-Puls (3) getrennt. Beide SF-Pulse und der Anregungspuls (1) durchlaufen verschiedene Wege und können mit der Diode zeitlich getrennt beobachtet werden. Der transmittierte Anregungspuls bleibt unberücksichtigt.

b)
Drei verschiedene Messungen
Nach dem Referenzpuls (1) erscheint der gelbe SF-Puls (2) und dann der rote SF-Puls (3). Bei gleicher Anregungsdichte ist ein statistisch schwankendes Intensitätsverhältnis der beiden SF-Pulse zu beobachten. Die Gesamtverzögerungszeiten schwanken im Mittel um etwa 1 ns.

Die Auswertung mehrerer Meßreihen ergab folgende Ergebnisse:

a) Die Zeitdifferenz der beiden Pulse entspricht innerhalb der experimentell bedingten Zeitauflösung exakt der experimentell eingestellten Wegdifferenz zwischen den gelben und

roten SF-Pulsen und ist innerhalb der Meßgenauigkeit exakt immer die gleiche. Sind beide Pulse zu sehen, dann sind sie miteinander zeitlich korreliert.

b) Das beobachtete Intensitätsverhältnis der beiden SF-Pulse (Puls 1 und 2) schwankt statistisch.

c) Die Gesamtverzögerungszeit der beiden SF-Pulse schwankt statistisch im Mittel im Bereich um 1 ns. (In Fig. 36 b wurden der Übersichtlichkeit wegen 3 Beispiele mit etwa gleicher Gesamtverzögerungszeit ausgewählt.)

Die "Zwei-Farben-SF" kann qualitativ anhand von Ratengleichungen verstanden werden. Dazu muß das bisher betrachtete vereinfachte Niveauschema in Fig. 22 erweitert werden. Wie in Fig. 37 zu sehen ist, haben die beiden Übergänge, die superfluoreszent abstrahlen können, ein gemeinsames Ausgangsniveau 1, das durch den Relaxationsprozeß im angeregten Zustand gefüllt wird. Die Kopplung der beiden SF-Übergänge mit den Wellenlängen λ_{12} (rot) und λ_{13} (gelb) erfolgt über den Relaxationsprozeß im Grundzustand. Wie in Kap. 4.3.2 am Zwei-Niveau-System gezeigt worden ist, muß für den Start eines SF-Pulses die Dichte ϱ_2 der kooperierenden Zentren im dazugehörigen Grundzustand einen Wert von etwa $1/\lambda^3$ überschreiten. Die gegebene Zentrenkonzentration liefert eine obere Grenze der erreichbaren Dichte der kooperierenden Zentren. Bei den beiden in Frage kommenden Wellenlängen befinden sich bei gleicher Zentrenkonzentration im Gebiet $(\lambda_{12})^3$ (rot) um den Faktor 1,2 mehr Zentren als im Gebiet $(\lambda_{13})^3$ (gelb). Diese Abhängigkeit der Startbedingungen von kooperierenden Zentren innerhalb verschieden großer Gebiete wird durch das Rechnen mit Dichten berücksichtigt. Die Kopplungskonstante V soll angeben, wie groß der Anteil der relaxierten Zustände aus dem roten Gesamtzustand ist, die zur gelben SF beitragen. Der Auffüllprozeß des gemeinsamen Niveaus 1 wird durch die Übergangswahrscheinlichkeit W_{01} und eine Anregungsdichte ϱ_0 beschrieben. Dies ist aus den folgenden Ratengleichungen qualitativ zu entnehmen:

$$\dot{\varrho}_1 = W_{01}\cdot\varrho_0 - W_{12}\cdot\varrho_1 - W_{12}\cdot\varrho_1\cdot\lambda_{12}^3\cdot\varrho_2 - W_{13}\cdot\varrho_1 - W_{13}\cdot\varrho_1\cdot\lambda_{13}^3\cdot\varrho_3$$

$$\dot{\varrho}_2 = -W_{2x}\cdot\varrho_2 + W_{12}\varrho_1 + W_{12}\cdot\varrho_1\lambda_{12}^3\cdot\varrho_2$$

$$\dot{\varrho}_3 = V\cdot W_{23}\cdot\varrho_2 - W_{3x}\cdot\varrho_3 \qquad + W_{13}\cdot\varrho_1 + W_{13}\cdot\varrho_1\cdot\lambda_{13}^3\cdot\varrho_3 \qquad (25)$$

Die Zeit nach der Anregung bis zum Start der SF-Pulse beträgt etwa 400 ps (siehe Kap. 5.1). Deshalb wird in der folgenden Simulation W_{01} = 2,5 x 10^9/s angenommen. Die Anregungsdichte ϱ_0 beträgt etwa 2 x 10^{17}/cm^3. Der Übergang von 1 ➡ 2 wird in den Ratengleichungen durch den üblichen spontanen Term $W_{12}\cdot\varrho_1$ und durch den induzierten Term $W_{12}\cdot\varrho_1\cdot\lambda_{12}^3\cdot\varrho_2$ beschrieben. Dabei ist W_{12} die Übergangswahrscheinlichkeit (bei der Simulation mit 10^6/s gewählt), ϱ_1 und ϱ_2 sind die Dichten der kooperierenden Zentren in den beteiligten Niveaus, und λ_{12}^3 berücksichtigt das Kooperationsvolumen der roten SF-Pulse.

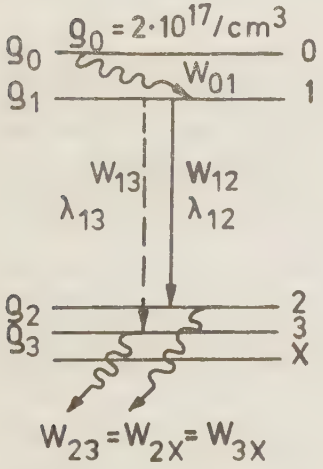

Fig. 37:
Erweitertes Niveauschema für die Zwei-Farben-SF.
Das für die beiden SF-Pulse gemeinsame Ausgangsniveau 1 wird über die Relaxation im angeregten Zustand mit der Übergangswahrscheinlichkeit W_{01} bevölkert. Die Kopplung der beiden SF-Übergänge mit den Wellenlängen λ_{12} (rot) und λ_{13} (gelb) ist über den Relaxationsmechanismus im Grundzustand mit der Übergangswahrscheinlichkeit W_{23} möglich.
Bei den vereinfachten Modellrechnungen werden die Übergangswahrscheinlichkeiten $W_{12} = W_{13}$ und $W_{23} = W_{2x} = W_{3x}$ gesetzt.

Der Übergang 1 ➡ 3 wird analog wie der von 1 ➡ 2 mit einem spontanen und induzierten Anteil beschrieben. Bei der folgenden numerischen Lösung der Ratengleichungen werden nährungsweise die Übergangswahrscheinlichkeiten $W_{13} = W_{12} = 10^6$/s ge-

setzt. (Das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten von W_{13} zu W_{12} hat etwa den Wert von 1,2). Die Relaxationsprozesse im Grundzustand werden für das Niveau 2 durch den Term $W_{2x} \cdot \varphi_2$ beschrieben. Dabei wird mit x irgendein beliebiges Niveau im Grundzustand bezeichnet. Die Zustände, die über den Relaxationsprozeß im Grundzustand aus dem roten Gesamtzustand ausscheren und zur gelben SF beitragen, werden durch die Kopplungskonstante V mit dem Term $V \cdot W_{23} \cdot \varphi_2$ berücksichtigt. Weiterhin beschreibt der Term $W_{3x} \cdot \varphi_2$ analog zu 2 die Entvölkerung des Niveaus 3. Mit $W_{2x} = W_{23} = W_{3x} = 2 \times 10^{10}/s$ und mit einer Kopplungskonstante von $V \sim 0{,}7$ ergibt sich die graphische Darstellung der Ratengleichungen. Diese Kopplungskonstante trägt der Tatsache Rechnung, daß nicht notwendigerweise alle in den Zustand 3 relaxierenden O_2^--Zentren am SF-Prozeß beteiligt sind. Sie kann im Prinzip Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Der verwendete Wert von $V \sim 0{,}7$ wurde durch Anpassung der Modellrechnung an die experimentellen Resultate gewonnen.

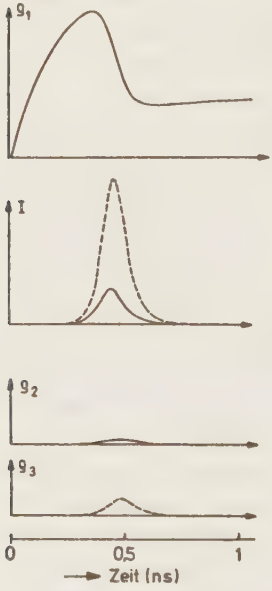

Fig. 38:
Modellrechnung der Zwei-Farben-SF anhand der Ratengleichungen (25). (Zahlenwerte siehe Text)

a)
Nach der Anregung erhöht sich die Anregungsdichte φ_1 durch den berücksichtigten Relaxationsprozeß im angeregten Zustand. Ab einer bestimmten Anregungsdichte φ_1 starten beide SF-Pulse, und die Dichte φ_1 wird entsprechend geringer. Durch den andauernden Relaxationsprozeß wird φ_1 danach noch etwas ansteigen.

b)
Intensität der gelben SF (gestrichelt) und der roten SF-Pulse. Das Intensitätsverhältnis zueinander wird durch die Kopplung im Grundzustand beeinflußt.

c) und d)
Dichten φ_2 und φ_3 der kooperierenden Zustände in den Niveaus E_2 und E_3.

Nachdem in Niveau 1 eine genügend hohe Anregungsdichte φ_1 erreicht ist, lösen sich die zwei SF-Pulse (Fig. 38 a). Haben die beiden SF-Pulse den Kristall verlassen, dann wird durch

den anhaltenden Auffüllprozeß φ_1 langsam ansteigen. Die Maximalwerte der SF-Pulse liegen an der Stelle des Wendepunktes der Kurve φ_1 . Das Intensitätsverhältnis ist durch die Wahl der Kopplungskonstante V ~ 0,7 zugunsten der gelben SF. Dementsprechend hoch sind auch die Dichten φ_2 und φ_3 in Fig. 38c und d.

Diese Rechnung hat nur Modellcharakter und zeigt die Tendenz, die auch im Experiment beobachtet wird. Da das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten gelb zu rot und das der Zentrendichten pro λ^3 rot zu gelb bei etwa 1,2 liegt, ist es möglich, daß bei einer bestimmten Anregungsdichte die statistische Schwankung des Verhältnisses der Intensitäten rot zu gelb in der Startphase bestimmt wird. Bei geringen Anregungsdichten überwiegt die rote SF mit geringerer Kopplungskonstante V. Bei größeren Anregungsdichten wird V über den durch die Umorientierung zusätzlichen Zerfallskanal (siehe Kap. 4.3.2) größer werden, wodurch die gelbe SF bevorzugt getriggert werden kann.

An dieser Stelle ist die Fragestellung nach der SF bei den angrenzenden Null-Phononenlinien bei λ = 559,8 nm (grün) und λ = 669,6 nm (dunkelrot) naheliegend. Die gelbe SF war nur bei hohen Anregungsdichten zu beobachten. Eine weitere, für die grüne SF nötige Erhöhung der Ausgangsleistung des Lasers war wegen der Gefahr der Zerstörung des Laserstabs nicht möglich. Die dunkelroten SF-Pulse müßten durch den $1/\lambda^3$ Faktor weiter bevorzugt werden. Hier nimmt jedoch die Übergangswahrscheinlichkeit stark ab. Durch Kopplung der unteren Niveaus und mögliche Triggerung des roten SF-Pulses (siehe Rot-Gelb-Übergang) muß man in der Anregungsdichte klein bleiben, um ihn zu sehen. Das heißt jedoch, solche Pulse hätten dann lange Verzögerungszeiten und kämen in Konkurrenz mit der spontanen Lebensdauer. Bei Wellenlängen, die im relaxierten angeregten Zustand absorbiert werden können, kann ebenfalls keine Superfluoreszenz aufkommen. In Richtung der grünen Null-Phononenlinie hat sich eine Tendenz angedeutet, die weiter verfolgt wird.

Weiterführende Arbeiten zur Zwei-Farben-SF liegen vor von F. Haake und R. Reibold /179/ sowie von P. Schwendimann /186/ (in Druck).

6.0 Zusammenfassung

Die Superfluoreszenz der O_2^--Zentren im KCl wird bei Zentrenkonzentrationen zwischen 8×10^{16} und $7 \times 10^{17}/cm^3$ unterhalb einer kritischen Temperatur beobachtet. Im Temperaturbereich des Übergangs zeigen sowohl die spontane Lebensdauer als auch die Übergangswahrscheinlichkeiten der dazugehörigen Null-Phononenlinien keine Anomalien.

Die SF-Pulse schwanken statistisch innerhalb Verzögerungszeiten bezogen auf den Anregungszeitpunkt zwischen t_d = 500 ps und $t_d \sim 10$ ns. Die dazugehörigen Pulsbreiten liegen zwischen 0,6 ns und 6 ns. Nicht nur die zu beobachtende Statistik der SF-Pulse schließt eine Laseraktivität aus, sondern vor allem die Unabhängigkeit des Auftretens von der Kristallorientierung, wobei eine Rückkopplung von Kryostatfenstern und anderen optischen Komponenten auszuschließen ist. Auch die Entstehung der beobachteten Pulse über Rückkopplung an Kristalloberflächen (siehe Kap. 3.7) wäre nur bei einer erfahrungsgemäß sehr hohen mittleren Verstärkung von 4,4/cm möglich. Gegen verstärkte spontane Emission spricht auch die Größe der Verzögerungszeiten und die Tatsache, daß die SF-Pulse in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung die gleichen Intensitäten und Verzögerungszeiten innerhalb des apparativen Auflösungsvermögens aufweisen.

Durch Veränderung der Anregungsbedingungen (siehe Kap. 3.6) können nicht mur Zentren in einem dünnen "Bleistift", sondern auch in einer Ebene einen superfluoreszenten Zustand bilden, und dementsprechend ist auch die Abstrahlcharakteristik ausgehend vom gewohnten Bild der Vorwärts- und Rückwärts-SF über eine seitlich abstrahlende SF bis zu einer Rundum-SF einstellbar.

Die SF-Pulse treten bei zwei Wellenlängen auf, die exakt mit dem Schwerpunkt der dazugehörigen Null-Phononenlinien des Spektrums der spontanen Emission übereinstimmen. Die Linienbreiten der SF-Pulse schwanken statistisch von Schuß zu Schuß und liegen zwischen 0,2 und 0,4 cm^{-1}. Die dazugehörigen Li-

nienbreiten der Null-Phononenlinien im spontanen Fluoreszenz-Spektrum liegen bei etwa 1,2 cm^{-1}. Die Kohärenzlänge der SF-Pulse $T_c > 100$ ps, mit einem Michelson-Interferometer bestimmt, stimmt größenordnungsmäßig mit den gemessenen Linienbreiten der SF-Pulse überein.

Die experimentellen Ergebnisse lassen sich nicht mit dem klassischen Dicke-Modell qualitativ verstehen (siehe Kap. 4.2 und 4.3).

- Die beobachteten statistisch schwankenden Verzögerungszeiten, Intensitäten und Pulsbreiten (siehe Kap. 5.1) bei konstanten Anregungsbedingungen sind ein Indiz für Quantenfluktuationen während der Startphase.

- Der Relaxationsprozeß im angeregten Zustand kann beim Entstehungsprozeß der SF-Pulse nicht unberücksichtigt bleiben. Während dieses Relaxationsprozesses werden etwa 20 - 25 μJ ans Gitter übertragen. Eine Abschätzung zeigt, daß dadurch eine lokale Temperaturerhöhung über die kritische Temperatur von etwa 30 K für die SF möglich ist. Experimentell konnte eine minimale Verzögerungszeit von etwa 500 ps auch bei verschieden hohen Anregungsdichten des Lasers beobachtet werden. Bei größeren Verzögerungszeiten war jedoch bei höheren Anregungsdichten eine Verschiebung zu kürzeren Zeiten zu beobachten. Durch Einführen einer Gesamtstartzeit, die die Relaxationszeit τ_r und die Abkühlzeit τ_A bis zum Unterschreiten der kritischen Temperatur berücksichtigt, werden die Relaxationsprozesse nach dem Anregungszeitpunkt bis zum Start der SF-Pulse einbezogen.

- Der Relaxationsprozeß im Grundzustand muß ebenfalls berücksichtigt werden. Das heißt, die Kooperationszahl j zum Startpunkt der SF (nach einer Gesamtstartzeit bezogen auf den Anregungszeitpunkt) muß sich während des Ablaufs der SF-Pulse ändern. Dieses zeigt sich deutlich bei den Experimenten zur "Zwei-Farben-SF" in Kap. 5.4. Bei bestimmten Anregungsdichten schwankt das Intensitätsverhältnis der roten und gelben SF-Pulse statistisch. Die dazu erforderliche Kopplung der bei-

den Übergänge ist über den Relaxationsprozeß im Grundzustand möglich. Die Vibration ist von der gehinderten Rotation der Zentren nicht entkoppelt. Durch die thermisch aktivierte Umorientierung der Zentren entsteht ein zusätzlicher Zerfallskanal für Vibronen. Die thermische Energie, die während der Relaxation im Grundzustand abgegeben wird, hat etwa die gleiche Größenordnung wie im angeregten Zustand. Schon während des lawinenartigen Ablaufs eines SF-Pulses (z.B. rot) wird τ_2 über die wahrscheinlicher werdenden Umorientierungen der Zentren schneller, und ein Teil davon kann zur gelben SF beitragen. Bei hohen Anregungsenergien kann über die schnelle Relaxationszeit τ_2 die gelbe SF bevorzugt werden und im umgekehrten Fall die rote. Eine qualitative Abschätzung anhand von Ratengleichungen hat gezeigt, daß die Relaxationszeit τ_2 nicht beliebig klein werden darf. Unterhalb 50 ps ist danach keine SF mehr zu beobachten. Diese Größenordnung ist auch mit dem Verschwinden des ESR-Signals im Bereich um etwa 35 K im Einklang.

- Experimente zur getriggerten SF zeigen ebenfalls, daß nicht alle angeregten Zentren zur SF beitragen. Etwa 1 ns bis zu 20 ns nach erfolgter Anregung lassen sich mehrere SF-Pulse zusätzlich triggern (siehe Kap. 5.3). Das heißt zusätzlich, daß nach etwa 1 ns das System wieder unterhalb der kritischen Temperatur sein muß, nachdem es vermutlich durch den vorhergehenden SF-Puls über Relaxationsprozesse im Grundzustand lokal erwärmt worden war.

Die polarisationsabhängigen Messungen (siehe Kap. 5.2) zeigten, daß drei Polarisationsrichtungen der SF-Pulse unabhängig voneinander anschwingen können. Während der Startphase setzt sich eine Polarisationsrichtung davon durch. Nach einer erneuten Anregung, etwa 7,5 ns später, schwingt dann eine um 90° verschobene Richtung bevorzugt an. Das Polarisationsgedächtnis ist demnach größer als 7,5 ns.

Die Untersuchung der SF, insbesondere auch der Zwei-Farben-SF, liefert zudem die Möglichkeit, Informationen über die Relaxationsprozesse zwischen den vibronischen Niveaus des angeregten und des Grundzustands zu gewinnen.

7.0 Literaturverzeichnis

Diese Literatursammlung kann vielleicht einigen als Grundlage zu weiteren Untersuchungen der Superfluoreszenz dienen. Eine grobe Unterteilung nach Sachgebieten ist möglich:

E 1 bis E 8	Übersichtsartikel zur SF, Lehrbücher
1 bis 13	Historisches zum O_2^--Zentrum Die ersten Absorptions-, Emissions- und ESR-Messungen. Zentrenchemie
14 bis 43	ESR-Messungen an O_2^-, O^-, O^{--}, O_3^-, S_2^--Zentren in Alkalihalogeniden und anderen Wirtsgittern
44 bis 63	Emissions- und Absorptionsmessungen an O_2^-, S_2^-, Se_2^- und SSe^- in Alkalihalogeniden und anderen Wirtsgittern
64 bis 77	Ramanuntersuchungen an O_2^-, S_2^-. Hot Luminescence, sowie Untersuchungen zur Reorientierung der Zentren
78 bis 79	Molekülphysik
81, 82, 85 bis 89	Allgemeines zu Alkalihalogeniden (Brechungsindex, Molwärmen, Smakula Formel und Phononendispersionsrelation)
90 bis 117	Bisher erschienene Experimente zur SF
115 bis 123	Verschiedenes (Magnet. Resonanz, Spin-Echo)
124 bis 129	Theoretische Grundlagen zum Verständnis der SF
130 bis 186	Theorie zur Superfluoreszenz

E 1	M. Gross, S. Haroche	Superradiance: An Essay on the Theory of Collective Spontaneous Emission, Phys. Reports 93(5), 301 (1982)
E 2	Q.H.F. Vrehen, H.M. Gibbs	Superfluorescence Experiments, Topics in Current Physics No. 27, Springer-Verlag 1982
E 3	M.F.H. Schuurmans, Q.H.F. Vrehen, D. Polder	Superfluorescence, Adv. in Atomic and Molecular Phys. 17, 167 (1981)
E 4	J.H. Eberly	Superradiance Revised Am.J.Phys. 40, 1374 (1972)
E 5	A.V. Andreev, V.I. Emel'Yanov, Yu.A. Ilinskii	Collective Spontaneous Emission (Dicke Superradiance), Sov.Phys.Usp. 23(8), 493 (1980)
E 6	W. Beall Fowler	Physics of Color Centres, Academic Press New York (1968)
E 7	H.M. Nussenzweig	Introduction to Quantum Optics, Gordon and Breach Science Publishers (1973)
E 8	L. Allen, J.H. Eberly	Optical Resonance and Two-Level Atoms, John Wiley & Sons New York (1975)

1) R. Hilsch, R.W. Pohl — Die an Luft meßbaren ultravioletten Dispersionsfrequenzen der Alkalihalogenide, Z.Phys.57, 145 (1929), 812 (1930)

2) R. Hilsch, R.W. Pohl — Göttinger Nachr.Math.Phys. Kl NF 1, 221, (1934)

3) H. Pick — Struktur von Störstellen in Alkalihalogenidkristallen, Ergebn.exakt.Naturwi.38, 1 (1955)

4) W. Känzig, M.H. Cohen — Paramagnetic Resonance of Oxygen in Alkali Halides, Phys.Rev.Lett.3, 509 (1959)

5) S. Akpinar — Über den Einbau chemisch definierter Ansätze in Alkalihalogenidkristallen, Ann.Phys.37(5), 429 (1940)

6) A.-D. von Lüpke — Über Sensibilisierung der photochemischen Wirkung in Alkalihalogenidkristallen, Ann.Phys.21, 1 (1934)

7) W. Honrath — Über die Bandenfluoreszenz von sauerstoff- und kohlenoxydhaltigen Alkalihalogenidkristallen, Ann.Phys.29, 421 (1937)

8) J. Ewles, D.S.Barmby — Optical and Electrical Properties of some Oxygen Activated Alkali Halides, Proc.Phys.Soc., LXIX,6B, 670 (1955)

9) J. Rolfe, F.R. Lipsett, W.J. King — Optical Absorption and Fluorescence of Oxygen ind Alkali Halide Crystals, Phys.Rev.123(2), 447 (1961)

10) J. Rolfe — Low-Temperature Emission Spectrum of O_2^- in Alkali Halides, J.Chem.Phys.40(6), 1664 (1964)

11) B. Fritz, F. Lüty, J. Anger — Der Einfluß von OH^--Ionen auf Absorptionsspektrum und Ionenleitfähigkeit von KCl-Einkristallen, Z.Physik 174, 240 (1963)

12) F. Fischer, H. Gründig, R. Hilsch — Definierter Einbau und optische Absorption von O_2^-- und O^{--}-Zentren in KCl-Kristallen, Z.Physik 189, 79 (1966)

13) F. Fischer, G. Gümmer — Quantenausbeute für den photochemischen Abbau von O^{--}-Zentren im KCl, Z.Physik 189, 97 (1966)

14) W. Känzig — Paraelasticity, a Mechanical Analog of Paramagnetism, J.Phys.Chem.Solids 23, 479 (1962)

15) H.R. Zeller, W. Känzig — Die elektronische Struktur des O_2^--Zentrums in den Alkalihalogeniden, I. Die paramagnetischen und optischen Spektren und ihre Interpretation, Helv.Phys.Acta 40, 845 (1967)

16) R.T. Shueg, H.R. Zeller — II. Theoretische Betrachtungen, Helv.Phys.Acta 40, 873 (1967)

17) J.R. Morton — Electron Resonance Spectrum of S_2^- in Sulfur-Doped Potassium Bromide, J.Chem.Phys.43, 3418 (1965)

18) J. Suwalski, H. Seidel — ENDOR Investigation of the S_3^- Sulphur Centre in KCl and NaCl, phys.stat.sol.13, 159 (1966)

19) A. Hausmann — Elektronenspin-Resonanz in Alkalihalogenid-Kristallen mit Schwefel- und Selenzusätzen, Z.Phys.192, 313 (1966)

20) R.S. Title — Paramagnetic-Resonance Studies of S, Se, and Te Donor Impurities in GaP, Phys.Rev.154(3), 668 (1967)

21) J.R. Brailsford, J.R. Morton, L.E. Vanotti — Paramagnetic Resonance Spectra of O^- Trapped in Alkali Jodide Crystals, J.Chem.Phys.49(5), 2237 (1968)

22) L.E. Vannotti, J.R. Morton — Paramagnetic-Resonance Spectra of S^- Trapped in Alkali Halide Crystals, Phys.Rev.174(2), 448 (1968)

23) K. Bachmann, W. Känzig, H.R. Zeller, A. Zimmermann — Paraelastisches Verhalten von S_2^--Zentren in Alkalihalogeniden, Phys.kondens.Materie 7, 360 (1968)

24) J.R. Brailsford, J.R. Morton — Paramagnetic Resonance Spectrum of O^- Trapped in KCl, RbCl, and KBr, J.Chem.Phys.51(11), 4794 (1969)

25) G. Pfister, W. Känzig — Isotopeneffekt in der paraelastischen Relaxation, Phys.kondens.Materie 10, 231 (1969)

26) R. Baumann, H.U. Beyeler, W. Känzig — Magnetische Wechselwirkung von O_2^--Zentren in KCl, KBr und KJ, Helv.Phys.Acta 44, 252, (1971)

27) H.U. Beyeler, R. Baumann, W. Känzig — Die elastische Wechselwirkung zwischen O_2^--Zentren in Alkalihalogeniden, Phys.kondens.Materie 11, 286 (1970)

28) T.G. Castner, Jr. — Spin-Lattice Relaxation of the O_2^--Molecule-Ion in the Potassium Halides, Phys.kondens.Materie 12, 104 (1970)

29) S. Sonoike, M. Matsui, K. Morimoto — ESR Study of Silver Cloride Crystals Doped with Sulphur Ions and Mercury Ions, Jpn.J.Appl.Phys.11(2), 247 (1972)

30) R. Baumann, H.U. Beyeler, J. Muggli — Magnetic and Elastic Interactions Between O_2^--Centres in Alkali Halide Crystals, Physics of Impurity Centres in Crystals, 209 (Tallin 1972)

31) E. Cornelis, E. Boesman — Pulse Saturation of the O_2^- EPR Signal in Some Potassium Halides, phys.stat.sol(b)56, 689 (1973)

32) J.M. de Siebenthal, H. Bill — A New O^- Center in $SrCl_2$ Crystals, phys.stat.sol(b)65, K 35 (1974)

33) A. Zumsteg, M. Ziegler, W. Känzig, M. Bösch — Magnetische und kalorische Eigenschaften von Alkali-Hyperoxid-Kristallen, Phys.cond.Matter 17, 267 (1974)

34) H. Bill — Experimental Results on the off Centre O^- Ion in KJ Crystals, Solid State Commun.17, 1209 (1975)

35) P. Matthys, M. Vanhaelst, E. Boesman — Spin-Lattice Relaxation of the O_2^- Centre in RbJ and RbBr, phys.stat.sol.(b) 77, 249 (1976)

36) J.M. de Siebenthal, H. Bill — EPR of O_2^- Pairs in $SrCl_2$ Crystals, Chem.Phys.Lett.45(2), 254 (1977)

37) B. Eilebrecht, L. Schwan — ENDOR Measurements of S^- Centres in Alkali Halides, J.de Physique 12 (37) C7-162 (1977)

38) P. Matthys, M. Vanhaelst, E. Boesman — Spin-Lattice Relaxation of the S_2^- Centre in KJ, phys.stat.sol. (b) 79, K 23 (1977)

39) J.M. de Siebenthal, H. Bill — A Disturbed O_2^- Molecule Ion in $SrCl_2$ Single Crystals, phys.stat.sol. (b) 79, 259 (1977)

40) H. Bill — An O_2^- Molecule Ion in CaF_2: Structure and Dynamical Features, J.Chem.Phys. 70(1), 277, (1979)

41) P. Matthys, E. Dobbeleir, B. Verbeke, E. Boesman — Spin-Lattice Relaxation of the O_2^- Centre in Potassium and Rutidium Halides, phys.stat.sol. (a) 59, 613 (1980)

42) J.R. Byberg — Primary Radiation-Induced Electron-Excess Defects and the Formation of O_3^- in $KClO_4$ and $KBrO_4$ Investigated by ESR, J.Chem.Phys. 75 (6), 2663 (1981)

43) J.R. Byberg — O^- Detected by ESR as a Radiation-Induced Electron-Excess Defect in $KClO_3$, J.Chem.Phys. 75 (6), 2667 (1981)

44) J.H. Schulman, R.D. Kirk — Luminiscent Sulfur Centres in Alkali Halides, Solid State Commun. 2, 105 (1964)

45) H. Pick — Luminiscence of Anion Centres in Alkali Halides, Proceedings of the International Conference on Luminiscence, 659 (1966)

46) F. Fischer — Farbzentren der Chalkogene in Alkalihalogenid-Kristallen, Z.Naturwiss.12, 313 (1967)

47) K.K. Rebane, A.F. Laisaar, L.A. Rebane — Luminiscence of O_2^- and S_2^- Impurity Molecules in Alkali Halide Crystals, Bull.Acad.Science USSR. Phys.Ser. 31, 2053 (1967)

48) J. Rolfe — Emission Spectra of S_2^-, Se_2^-, and SeS^- Ions in KJ Crystals, J.Chem.Phys.49, 4193 (1968)

49) J. Rolfe — Some Spectroscopic Constants for O_2^--Ions in Alkali Halide, J.Chem.Phys.49, 963 (1968)

50) L.A. Rebane, YU.N. Kharchenko — Shape and Width of No-Phonon-Lines in the Luminescence Spectrum of the KBr-O_2^- Crystal, Opt.Spectrosc.28, 511 (1970)

51) L.A. Rebane — Structure of the Phonon Wing in Spectra of the O_2^- and S_2^- Molecular Ions in a KJ Crystal, Opt.Spectrosc.31, 123 (1971)

52) L.A. Rebane — Vibronic Spectra of Molecular Centres in Alkali Halides and Local Lattice Dynamics, Physics of Impurity Centres in Crystals, 353 (1972)

53) J. Rolfe, M. Ikezawa, T. Timusk — Phonon Sidebands in the Emission Spectrum of O_2^- in Alkali Halide Crystals, Phys.Rev. B7(8), 3913 (1973)

54) M. Ikezawa, J. Rolfe — Zero-Phonon Transitions in O_2^-, S_2^-, Se_2^-, and SeS^- Molecules Dissolved in Alkali Halide Crystals, J.Chem.Phys.58(5), 2024 (1973)

55) K.K. Rebane, L.A. Rebane — Small Molecular Ions as Impurity Centres in Crystals, J.Pure Appl.Chem. 37, 161 (1974)

56) G.J. Vella, R. Rolfe — Zero-Phonon Absorption Transitions in S_2^- and Se_2^- Molecules Dissolved in Potassium Jodide Crystals, J.Chem.Phys.61 (1), 41 (1974)

57) L.A. Rebane, A.B. Treshchalov — Low-Temperature Photostimulated Reorientations of Molecular Centres O_2^- in CsBr and S_2^- in KJ from the Data of Polarized Luminescence, J.Lumin. 12/13, 425 (1976)

58) D. Heyer, A. Hausmann — Lumineszenz und Photochemie von Schwefelzentren in KCl und KBr, Z.Phys. B26, 318 (1977)

59) T. Arai, T.P. Martin — Absorption Spectra of S_2 Molecules Embedded in van der Waals Solids, phys.stat.sol. (b) 81, 185 (1977)

60) J. Prakash — Photo-Induced Polarization and Depolarization in Sulphur-Doped Potassium Jodide, Indian J. Pure Appl.Phys.16, 995 (1978)

61) J. Rolfe — First Excited State of the O_2^- Ion, J.Chem.Phys.70(5), 2463 (1979)

62) A. Laisaar, A. Niilisk, A. Mugra — Spectroscopic Studies of Local Centres in Crystals under Hydrostatic Pressure at Low Temperatures: O_2^- Ions in Alkali Halides, Proc.VII.-the Intern. AIRAPT Conf. France, 772 (1980)

63) L.A. Rebane, O.I. Sild — Spectroscopy of Molecular Impurities in Alkali Halides, Proc.Intern.Conf.Riga, 619 (1981)

64) R.H. Silsbee — Reorientation of O_2^- in KJ at Low Temperature, J.Phys.Chem.Solids 28, 2525 (1967)

65) W. Holzer, W.F. Murphy, H.J. Bernstein, J. Rolfe — Raman Spectrum of O_2^- Ion in Alkali Halide Crystals, J.Mol.Spectrosc.26, 513 (1968)

66) M. Bösch, W. Känzig, E.F. Steigmeier — Molekül- und Gitterschwingungen im Natriumhyperoxid, Phys.kondens.Materie 16, 107 (1973)

67) L.A. Rebane, A.B. Treshchalov, T.Yu. Khal'dre — Raman Scattering and Reorientation of S_2^- Ions in KJ, Sov.Phys.Solid State 16 (8), 1460 (1975)

68) C.A. Sawicki, D.B. Fitchen — Resonant Raman Scattering from the S_2^- Ion in NaJ, Chem.Phys.Lett.40(3), 420 (1976)

69) C.A. Sawicki, D.B. Fitchen — Laser-Excited Spectra and Reorientation of the S_2^- Ion in Alkali Halides, J.Chem.Phys.65(11), 4497 (1976)

70) A. Brun, A.C. Boccara, N. Moreau — Réorientation de L'ion S_2^- dans KJ au Cours du Cycle de Pompage Optique, J.Phys.(France) 37, 111 (1976)

71) A.B. Treshchalov, L.A. Rebane — Reorientation of O_2^- and S_2^- Centres in Excited Electronic State in Alkali Halide Crystals, Sov.Phys.Solid State 20 (2), 272, (1978)

72) K. Rebane, P. Saari — Hot Luminescence and Relaxation Processes in Resonant Secondary Emission of Solid Matter, J.Lumin.16, 223 (1978)

73) W. Holzer, S. Racine J. Cipriani — Solved and Unsolved Problems in the Raman Spectrum of S_2^- in KJ Single Crystals, J. Raman Spectrosc. (GB) 7 (1), 22 (1978)

74) K.K. Rebane, I.Y. Tehver, V.V. Hizhnyakov — On the Theory of Resonant Secondary Radiation: Scattering, Luminescence, and Hot Luminescence, Proc. First Joint USA-USSR Symp., 393 (1979)

75) A.B. Treshchalov, L.A. Rebane — Stress-Induced Linear and Magnetic Circular Dichroism Studies of O_2^-, S_2^-, Se_2^- and NO_2^--Ions in Alkali Halides, J.Mol.Structure 61, 1 (1980)

76) O. Sild, I. Sildos — Zeeman Effect in Low-Temperature Luminescence Spectra of Molecular Ions O_2^- and S_2^- in Alkali Halide Crystals, phys.stat.sol. (b) 106, 675 (1981)

77) L.A. Rebane, A.A. Khaav — Interference Effects in Resonant Raman Scattering by S_2^- Molecules in Crystalline KJ, Sov.Phys.-Solid State (USA) 24 (9), 1452 (1982)

78) G. Herzberg — Spectra of Diatomic Molecules, D. van Nostrand Co., Inc., Princeton, N.J., 1950 1st. ed., p. 101

79) G. Herzberg — Spectra of Diatomic Molecules, D. van Nostrand Co., Inc., Princeton, N.J., 1950 1st. ed., p. 151

80) P.M. Morse — Diatomic Molecules According to the Wave Mechanics. II. Vibrational Levels, Phys.Rev.34, 57 (1929)

81) A. Smakula — Über Erregung und Entfärbung lichtelektrisch leitender Alkalihalogenide, Z.Physik, 59, 603 (1929)

82) Stöckmann — Landolt-Börnstein, 4. Teil, Kristall 982 (Springer 1955)

83) Tektronix — 7104 Oscilloscope Instruction Manual (1978)

84) Tektronix — 7 B 15 Delaying Time Base Operators, Instruction Manual (1978)

85) Z. Gyulai — Die Dispersion einiger Alkalihalogenide im Ultravioletten, Z. Physik 46, 80 (1927)

86) H. Harting — Die optische Lage einiger Kristalle und ihre Darstellung durch die Hartmannsche Gleichung, Z. Instrumentenkunde 63, 125 (1943)

87) K. Clusius, J. Goldmann, A. Perlick — Ergebnisse der Tieftemperaturforschung: Die Molwärmen der Alkalihalogenide LiF, NaCl, KCl, KBr, KJ, RbBr und RbJ, Z. Naturforschung 4a, 424 (1949)

88) J.R.D. Copley, R.W. Macpherson, T. Timusk — Lattice Dynamics of Potassium Chloride, Phys.Rev. 182(3), 965 (1969)

89) G. Raunio, L. Almqvist — Dispersion Relations for Phonons in KCl at 80 and 300 K, phys.stat.sol.33, 209 (1969)

90) N. Skribanowitz, I.P. Herman, J.C.Mac Gillivray, M.S. Feld — Observation of Dicke Superradiance in Optically Pumped HF Gas, Phys.Rev.Lett.30(8), 309 (1973)

91) T.A. De Temple, T.K. Plant, P.D. Coleman — Intense Superradiant Emission at 496 µm from Optically Pumped Methyl Fluoride, Appl.Phys.Lett.22(12), 644 (1973)

92) M. Gross, C. Fabre, P. Pillet, S. Haroche — Observation of Near-Infrared Dicke Superradiance on Cascading Transitions in Atomic Sodium, Phys.Rev.Lett.36(17), 1035 (1976)

93) A. Flusberg, T. Mossberg, S.R. Hartmann — Observation of Dicke Superradiance at 1,30µm in Atomic TI Vapor, Phys.Lett.58A(6), 373 (1976)

94) Q.H.F. Vrehen, H.M.J. Hikspoors, H.M. Gibbs — Quantum Beats in Superfluorescence in Atomic Cesium, Phys.Rev.Lett.38(14), 763 (1977)

95) H.M. Gibbs, Q.H.F. Vrehen, H.M.J. Hikspoors — Single-Pulse Superfluorescence in Cesium, Phys.Rev.Lett.39(9), 547 (1977)

96) M. Gross, J.M. Raimond, S. Haroche — Doppler Beats in Superradiance, Phys.Rev.Lett.40, 1711 (1978)

97) J. Okada, K. Jkeda, M. Matsuoka — Cooperative Cascada Emission, Opt.Commun.26(2), 189 (1978)

98) J. Okada, K. Jkeda, H. Matsuoka — Streak Camera Investigation of Superradiance Development, Opt. Commun.27(3), 321 (1978)

99) A. Crubellier, S. Liberman, P. Pillet — Doppler-Free Superradiance Experiments with Rb Atoms: Polarization Characteristic Phys.Rev.Lett.41(18), 1237 (1978)

100) C. Brechignac, Ph. Cahuzac — Observation of two visible Dicke-Superradiant Transitions in Atomic Europium, J.Phys.(Paris)40(15)L-123 (1979)

101) Ph. Cahuzac, H. Sontag, P.E. Toschek — Visible Superfluorescence from Atomic Europium, Opt.Commun.31(1), 37 (1979)

102) T. Kuliński, F. Kaczmarek — Visible Superradiance of Excited F_2 Colour Centres in LiF Single Crystals, Opt.Commun.28(1), 101 (1979)

103) Q.H.F. Vrehen, M.F.H. Schuurmans — Direct Measurement of the Effective Initia Tipping Angle in Superfluorescence, Phys.Rev.Lett.42(4), 224 (1979)

104) F. Gounand, M. Hugon, P.R. Fournier, J. Berlande — Superradiant Cascading Effects in Rubidium Rydberg Levels, J.Phys.B12(4), 547 (1979)

105) J. Marek — Observation of Superradiance in Rb Vapour, J.Phys.B12(7), L229 (1979)

106) M. Gross, P. Goy, C. Fabre, S. Haroche, J.M. Raimond — Maser Oscillation and Microwave Superradiance in Small Systems of Rydberg Atoms Phys.Rev.Lett.43(5), 343 (1979)

107) N.W. Carlson, D.J. Jackson, A.L. Schawlow, M. Gross, S. Haroche — Superradiance Triggering Spectroscopy, Opt.Commun.32(2), 350 (1980)

108) K. Midorikawa, I. Matsuda, M. Obara, T. Fujioka — Efficient Energy Extraction by Superradiant Emission in NH_3, Opt.Commun.32(3), 447 (1980)

109) T. Kuliński, F. Kaczmarek, M. Ludwiczak, Z. Blasczak — Emission Characteristics of a LiF:F_2 Colour Centre Laser in the Visible, Opt.Commun.35, 120 (1980)

110) C. Bréchignac, Ph. Cahuzac — Population Inversion on the Resonance Line of Strontium by Using Cascading Superfluorescences in a Three-Level System, J.Phys.B14, 221 (1981)

111) V.S. Egorov, N.M. Zatserkovnyuk — Investigation of the Characteristics of Neon Superradiation at a Wave Length of 614,3 nm in a Pulsed Discharge in a Capillary, Opt.Spektrosk.50, 858 (1981)

112) A.T. Rosenberger, T.A. De Temple — Far-Infrared Superradiance in Methyl Fluoride, Phys.Rev.A24(2), 868 (1981)

113) Q.H.F. Vrehen, J.J. der Weduwe — Quantum Fluctuations in Superfluorescence Delay Times, Phys.Rev.A24(5), 2857 (1981)

114) R. Florian, L.O. Schwan, D. Schmid — Superradiance and High-Gain Mirrorless Laser Activity of O_2^--Centres in KCl, Solid State Com.42(4), 55 (1982)

115) R. Florian, L.O. Schwan, D. Schmid — Superradianz von O_2^--Zentren in KCl-Kristallen, Verh. DPG (IV) 17, 455 (1982)

116) R. Florian, L.O. Schwan, D. Schmid — Schwingungsrelaxationszeit von O_2^--Zentren im elektronisch angeregten Zustand, Verh. DPG (VI) 18, 468 (1983)

117) L.O. Schwan, R. Florian, D. Schmid — Zwei-Farben-Superfluoreszenz im Drei-Niveau-System, Verh. DPG (VI) 18, 467 (1983)

118) E.L. Hahn — Nuclear Induction due to Free Lamor Precession, Phys.Rev.77, 297 (1950)

119) E.L. Hahn — Free Nuclear Induction, Phys. Today 5, 4 (1953)

120) E.L. Hahn — Spin Echoes, Phys.Rev.80(4), 580 (1950)

121) N. Bloemberger, R.V. Pound — Radiation Damping in Magnetic Resonance Experiments, Phys.Rev.95(1), 8 (1954)

122) S. Bloom — Molecular Ringing, J.Appl.Phys.27(7), 785 (1956)

123) S. Bloom — Effects of Radiation Damping on Spin Dynamics, J.Appl.Phys. 28(7), 800 (1957)

124) R.P. Feynman, F.L. Vernon, Jr., R.W. Hellwarth — Geometrical Representation of the Schrödinger Equation for Solving Maser Problems, J.Appl.Phys.28(1), 49 (1957)

125) R. Bonifacio, D.M. Kim, M.O. Scully — Description of a Many-Atom-System in Terms of Coherent Boson States, Phys.Rev.187(2), 441 (1969)

126) F.T. Arecchi, E. Courtens, R. Gilmore, H. Thomas — Atomic Coherent States in Quantum Optics, Phys.Rev. A 6(6), 2211 (1972)

127) G.S.Agarwal — Coherence Matrices of Radiation from an Excited System, Opt.Commun.37(5), 349 (1981)

128) A.M. Levine, W.M. Schreiber, A.N. Weiszmann — Semiclassical Interaction of Multilevel Atoms with Monochromatic Electromagnetic Fields, Phys.Rev.A 25(2), 625 (1982)

129) J. Seidel — Theoretisch-Physikalisches Seminar zur Quantenelektrodynamik und -optik WS 1978/7 Inst. für Theoretische Physik der Univ. Düsseldorf

130) R.H. Dicke — Coherence in Spontaneous Radiation Processes, Phys.Rev.93, 99 (1954)

131) V. Ernst — Coherent Emission of a Photon by Many Atoms, Z.Physik 218, 111 (1969)

132) V. Ernst, P. Stehle — Emission of Radiation from a System of Many Excited Atoms, Phys.Rev.176(5), 1456 (1968)

133) J.H. Eberly, N.E. Rehler — Dynamics of Superradiant Emission, Phys.Lett.29A(3), 142 (1969)

134) D.C. Burnham, R.Y.Chiao — Coherent Resonance Fluorescence Excited by Short Light Pulses, Phys.Rev. 188(2), 667 (1969)

135) R. Bonifacio, P. Schwendimann — The Superradiance Laser, Lett.Nuovo Cimento 3, 509 (1970)

136) R. Bonifacio, P. Schwendimann — A Master Equation Approach to Superradiance, Lett.Nuovo Cimento 3, 512 (1970)

137) D. Dialetis — Spontaneous Emission by a System of Identical Atoms, Phys.Rev. A 2(3), 599 (1970)

138) F.T. Arecchi, E. Courtens — Cooperative Phenomena in Resonant Electromagnetic Propagation, Phys.Rev.A 2(5), 1730 (1970)

139) V. Degiorgio — Statistical Properties of Superradiant Pulses, Opt.Commun.2(8), 362 (1971)

140) N.E. Rehler, J.H. Eberly — Superradiance, Phys.Rev.A 3(5), 1735 (1971)

141) R. Bonifacio, P. Schwendimann, F. Haake — Quantum Statistical Theory of Superradiance I, Phys.Rev. A 4(1), 302 (1971)

142) R. Bonifacio, P. Schwendimann, F. Haake — Quantum Statistical Theory of Superradiance II, Phys.Rev A 4(3), 854 (1971)

143) C.R. Stroud, Jr., J.H. Eberly, W.L. Lama, L. Mandel — Superradiant Effects in Systems of Two-Level Systems, Phys.Rev. A 5(3), 1094 (1972)

144) E. Ressayre, A. Tallet — Effects of Inhomogeneous Broadening on Cooperative Spontaneous Emission of Radiation, Phys.Rev.Lett 30(25), 1239 (1973)

145) R. Jodin, L. Mandel — Superradiance in an Inhomogeneously Broadened Atomic System, Phys.Rev. A 9(2), 873 (1974)

146) G. Banfi, R. Bonifacio — Superfluorescence and Cooperative Frequency Shift, Phys.Rev.Lett. 33(21), 1259 (1974)

147) R. Friedberg, S.R. Hartmann — Temporal Evolution of Superradiance in a Small Sphere, Phys.Rev. A 10(5), 1728 (1974)

148) R. Bonifacio, L.A. Lugiato — Cooperative Radiation Processes in Two-Level Systems: Superfluorescence, Phys.Rev. A 11(5), 1507 (1975)

149) R. Bonifacio, L.A. Lugiato — Cooperative Radiation Processes in Two-Level Systems: Superfluorescence II, Phys.Rev. A 12(2), 587 (1975)

150) C.T. Lee — Diagrammatic Technique for Calculating Matrix Elements of Collective Operators in Superradiance, Phys.Rev. A 12(2), 575 (1975)

151) G. Banfi, R. Bonifacio — Superfluorescence and Cooperative Frequency Shift, Phys.Rev. A 12(5), 2068 (1975)

152) M. Gronchi, L.A. Lugiato — Phase-Space Description of Oscillatory Superfluorescence, Phys.Rev. A 13(2), 830 (1976)

153) C.T. Lee — Transition from Incoherence to Coherence in the Spontaneous Emission of Excited Systems, Phys.Rev. A 13(4), 1657 (1976)

154) E. Ressayre, A. Tallet — Basic Properties for Cooperative Emission of Radiation, Phys.Rev.Lett.37(7), 424 (1976)

155) J.C. MacGillivray, M.S. Feld — Theory of Superradiance in an Extended, Optical Thick Medium, Phys.Rev.A 14(3) 1169 (1976)

156) A. Crubellier — Level-Degeneracy Effects in Superradiance Theory, Phys.Rev. A 15(6), 2430 (1977)

157) E. Ressayre, A. Tallet — Quantum Theory for Superradiance, Phys.Rev. A 15(6), 2410 (1977)

158) R. Glauber, F. Haake — The Initiation of Superfluorescence, Phys.Lett.68A(1), 29 (1978)

159) F. Haake — Decay of Unstable States, Phys.Rev.Lett.41(25), 1685 (1978)

160) D. Polder, M.F.H. Schuurmans, Q.H.F. Vrehen — Superfluorescence: Quantum-Mechanical Derivation of Maxwell-Bloch Description with Fluctuating Field Source, Phys.Rev. A 19(3), 1192 (1979)

161) F. Haake, H. King, G. Schröder, J. Haus, R. Glauber, F. Hopf — Macroscopic Quantum Fluctuations in Superfluorescence, Phys.Rev.Lett.42(26), 1740 (1979)

162) J.A. Herman, R.K. Bullough — Oscillating Superfluorescence: The Shape and Delay of the Leading Pulse, Opt.Commun.31(2), 219 (1979)

163) F.A. Hopf — Phase-Wave Fluctuation in Superfluorescence, Phys.Rev.A 20(5), 2064 (1979)

164) F. Haake, H. King, G. Schröder, J. Haus — Fluctuations in Superfluorescence, Phys.Rev. A 20(5), 2047 (1979)

165) R. Bonifacio, J.D. Farina, L.M. Narducci — Transverse Effects in Superfluorescence, Opt.Commun. 31(3), 377 (1979)

166) I.R. Senitzky, J. Genossar — Cooperative Relaxation in Coherently Pumped Three-Level Systems, Phys.Rev.Lett. 44(22), 1453 (1980)

167) N.K. Solovarov — Excitation of Superradiant Atomic State by a Pulse of Quantum Field, Optica Acta 27(3), 393 (1980)

168) A. Crubellier, S. Liberman, P. Pillet — Superradiance and Subradiance in Three-Level Systems, Opt.Commun. 33(2), 143 (1980)

169) F. Haake, J. Haus, H. King, G. Schröder, R. Glauber — Delay-Time Statistics and Inhomogeneous Line Broadening in Superfluorescence, Phys.Rev.Lett. 45(7), 558 (1980)

170) F. Haake, J. Haus, H. King, G. Schröder, R. Glauber — Delay-Time Statistics of Superfluorescent Pulses, Phys.Rev. A 23(3), 1322 (1981)

171) J.C. MacGillivray, M.S. Feld — Limits of Superradiance as a Process for Achieving Short Pulses of High Energy, Phys.Rev. A 23(3), 1334 (1981)

172) F.P. Mattar, H.M. Gibbs, S.L. McCall, M.S. Feld — Transverse Effects in Superfluorescence, Phys.Rev.Lett.46(17), 1123 (1981)

173) A.V. Durrant — The Role of Interference Effects in the Amplification of Light by Stimulated Emission, Optica Acta 28(5), 627 (1981)

174) A.V. Andreev, R.V. Arutyunyan, YU.A. IIinskii — Kinetics of Superfluorescent Decay in Multilevel Systems, Opt.Spectrosc. 50(6), 578 (1981)

175) G. Schröder, F. Haake, H. Lewenstein, K. Riazewski — Spectral Properties of Superfluorescent Pulses, Opt.Commun. 39(3), 194 (1981)

176) A.V. Karnyukhin, R.N. Kuz'min, V.A. Namiot — Semiclassical Theory of Superradiance in One-Dimensional Crystalline Structures, Sov.Phys.JETP 55(2), 334 (1982)

177) P.D. Drummond, J.H. Eberly — Transverse Coherence and Scaling in Four-Dimensional Simulations of Superfluorescence, Phys.Rev. A 25(6), 3446 (1982)

178) C. Leonardi, J.S. Peng, A. Vaglica — Beats in Dicke Superradiant Emission, J.Phys.B 15, 4017 (1982)

179) F. Haake, R. Reibold — Two-Colour Superfluorescence from Three-Level Systems, Phys.Lett. 92A(1), 29 (1982)

180) C.T. Lee — Fluctuations in Tipping Angles and Delay Times of Simple Superfluorescence, Appl.Phys.Lett. 41(9), 821 (1982)

181) C.M. Bowden, C.C. Sung — Initiation of Superfluorescence in Coherently Pumped Three-Level Systems, Phys.Rev.Lett.50(3), 156 (1983)

182) F.P. Mattar, C.M. Bowden — Coherent Pump Dynamics, Propagation, Transverse, and Diffraction Effects in Three-Level Superfluorescence and Control of Light by Light, Phys.Rev. A 27(1), 345 (1983)

183) E.A. Watson, H.M. Gibbs, F.P. Mattar, M. Cormier, Y. Claude, S.L. McCall, M.S. Feld — Quantum Fluctuations and Transverse Effects in Superfluorescence, Phys.Rev. A 27(3), 1427 (1983)

184) C.M. Bowden — Pump Dynamical Effects in Superfluorescent Quantum Initiation and Pulse Evolution, Lecture Notes in Physics 182, 195 (1983)

185) R. Bonifacio, L.A. Lugiato — Superfluorescence in a Cavity, Opt. Commun. 47(1), 79 (1983)

186) P. Schwendimann — private Mitteilung

187) M. Krauss, D. Neumann — Excited Electronic States of O_2^-, Phys.Rev. A 7(1), 69 (1973)

D a n k

Die vorliegende Arbeit wurde am Physikalischen Institut IV der Universität Düsseldorf angefertigt.

Bei Herrn Prof. Dr. D. Schmid möchte ich mich für die Bereitstellung eines Arbeitsplatzes in seinem Institut sowie für sein reges Interesse an dieser Arbeit bedanken.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dr. L. O. Schwan für die großzügige Unterstützung bei theoretischen und experimentellen Problemen. Er hat mit vielen Anregungen das Gelingen dieser Arbeit ermöglicht.

Mein Dank gilt vor allem Frau Galazka, die mit großem Interesse und Fleiß die für diese Arbeit benötigten Kristalle im Kristallabor herstellte.

Allen Mitarbeitern des Physikalischen Instituts IV der Universität Düsseldorf danke ich für eine gute Zusammenarbeit.

Den Angestellten der Zentralwerkstatt Physik unter der Leitung von Herrn Schiene danke ich für präzise Arbeiten und wertvolle Ratschläge beim Aufbau der Apparaturen.

Mein Dank gilt auch der zentralen Betriebstechnik der Universität Düsseldorf für unbürokratische Unterstützung bei Tieftemperaturexperimenten.

Schließlich danke ich meiner Frau für die rasche Erledigung der umfangreichen Schreibarbeiten.

L e b e n s l a u f

19. 4. 1945	geboren in Tullnitz, Kreis Znaim; Eltern: Rudolf Florian, Schlossermeister, Rosa Florian, geb. Janoscheck, Lehrerin
1952 - 1960	Besuch der Volksschule in Essen
1960 - 1963	Lehre als Elektromechaniker bei der Firma Relais- und Feinwerkbau Helmut Mauell in Neviges, Rheinland
1963 - 1971	Mitarbeiter bei der o.g. Firma Mauell in Neviges, davon etwa 2 Jahre als Geselle in der Entwicklungsabteilung, danach Tätigkeiten in der Kalkulation, Arbeitsvorbereitung, im Vertrieb und zuletzt als Elektrotechniker im Konstruktionsbüro
1964 - 1967	Abendschule für Maschinenwesen in Essen, Elektrotechnikerlehrgang
1968	Aufnahme am Bischöflichen Abendgymnasium in Essen
1971	Obermonteur bei der Firma AEG in Essen
1972	Techn. Zeichner bei der Firma Siemens Essen
1972	Abitur
1972	Eheschließung mit der Studentin der Pädagogik Annelie Florian, geb. Jansen
1972	Immatrikulation im Fach Physik und Philosophie an der Ruhr-Universität Bochum
1974	Vordiplomprüfung in Physik Zwischenprüfung in Philosophie
1977	Diplom-Prüfung Physik
1977	Wissenschaftliche Hilfskraft an der Universität Bochum bei Herrn Prof. Dr. J. Pelzl, Exp.Physik IV. Tätigkeitsbereich: Betreuung und Koordination des Raman-Labors
1978	Exmatrikulation an der Ruhr-Universität Bochum
1978 - 1979	Mitarbeiter im Institut für Schall- und Wärmeschutz Prof. Dr. Dr. W. Zeller in Essen. Tätigkeitsbereiche: Koordinierung und Abwicklung von Prüfarbeiten an Konstruktionen und Industrieanlagen im Laboratorium und in der Praxis, akustische Untersuchungen auf dem Gebiet des Städte-, Wohnungs- und Industriebaus

seit 1980	Aufnahme als wissenschaftlicher Angestellter eines neugegründeten Physikalischen Instituts, Lehrstuhl IV, der Universität Düsseldorf
1981	Geburt der Tochter Christine
1980 - 1983	Betreuung des Fortgeschrittenen-Praktikums und Koordinierung der Heliumversorgung an der Universität Düsseldorf

Zeitaufgelöste Experimente zur Superfluoreszenz der O_2^--Zentren in KCl-Kristallen

Kurzfassung:

Die Lumineszenz der O_2^--Zentren in Alkalihalogeniden liegt im sichtbaren Spektralbereich. Über die im Absorptions-Emissions-Zyklus auftretenden Relaxationsprozesse lagen bisher noch fast keine experimentellen Ergebnisse vor. Die große Stokes-Verschiebung zwischen Absorption und Emission und die bei der Temperatur des flüssigen Heliums beobachteten Nullphononenlinien lassen auf eine geringe Kopplung ans Gitter schließen, und damit bestand eine Hoffnung, daß die Relaxationszeiten im Bereich des zeitlichen Auflösungsvermögens der verwendeten Apparatur von ca. 30 ps liegen würden. Dieses Auflösungsvermögen war prinzipiell begrenzt durch die zum Aufbau zur Verfügung stehenden Geräte (insbesondere die erreichbare Pulsdauer des modengekoppelten Nd-YAG-Lasers).

Bei den für die Experimente notwendigen hohen Anregungsdichten wurde in der vorliegenden Arbeit zusätzlich zur spontanen Fluoreszenz eine sehr intensive, gerichtete, kohärente Emission beobachtet, die als Superfluoreszenz identifiziert werden konnte, wie sie von Dicke bereits 1954 theoretisch vorhergesagt wurde (Superradiance) über die aber bisher nur wenige experimentelle Untersuchungen vorlagen.

In der vorliegenden Arbeit wurden insbesondere die statistischen Fluktuationen der Verzögerungszeiten der SF-Pulse und ihrer Intensitäten untersucht, die nach den neueren umfangreichen theoretischen Rechnungen zu erwarten waren. Dabei wurde festgestellt, daß bei genügend hohen Anregungsdichten nicht nur die monochromatische Dicke-SF beobachtet wird, sondern daß auch "Zwei-Farben-Superfluoreszenz" eines Drei-Niveau-Systems beobachtet werden kann. Die experimentellen Resultate stehen in Einklang mit der zu ihrer Deutung von Haake und Reibold ausgearbeiteten Theorie.

Qualitative Modellvorstellungen des Entstehungsvorgangs der Superfluoreszenzpulse zusammen mit systematischen, experimentellen, zeitaufgelösten Untersuchungen ermöglichten einen neuen Zugang zu den Relaxationsprozessen im angeregten und im Grundzustand. So wurde zusätzlich zu den statistischen Fluktuationen eine systematische Startverzögerung der Superfluoreszenz von etwa 400 ps festgestellt, obwohl die Anklingzeit der spontanen Emission sich kleiner als 150 ps ergab, was sich als eine obere Grenze für die Relaxationszeit im angeregten Zustand darstellt. Diese Zeitdifferenz wird als Abkühlzeit der Zentren nach einer lokalen Aufheizung über die kritische Temperatur während des Relaxationsprozesses im angeregten Zustand gedeutet. Weiterhin ergaben Abschätzungen der Relaxationszeit im Grundzustand anhand der kritischen Anregungsdichte Werte von größer als 50 ps.

Schließlich wird über Experimente bezüglich des Polarisationsverhaltens, des Startvorgangs bei Rückkopplung der Superfluoreszenz und der 2-dimensionalen (Ebene) Superfluoreszenz berichtet.